

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-345308

(43)Date of publication of application : 12.12.2000

(51)Int.Cl.
C22C 45/02
B22F 1/00
B22F 3/00
C22C 33/02
C22C 38/00
H01F 1/22

(21)Application number : 11-234778 (71)Applicant : ALPS ELECTRIC CO LTD
INOUE AKIHISA

(22)Date of filing : 20.08.1999 (72)Inventor : YOSHIDA SHOJI
MIZUSHIMA TAKAO
MAKINO TERUHIRO
INOUE AKIHISA

(30)Priority

Priority number : 11084932 Priority date : 26.03.1999 Priority country : JP

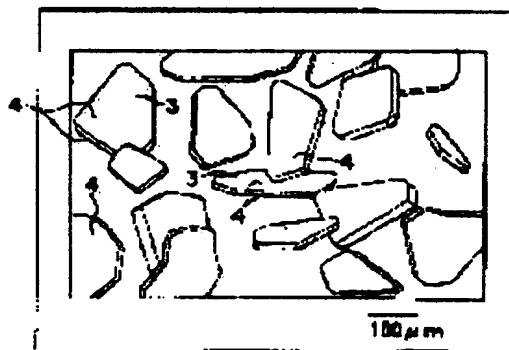
(54) AMORPHOUS SOFT MAGNETIC ALLOY SINTERED BODY, AMORPHOUS SOFT MAGNETIC ALLOY MAGNETIC CORE AND PRODUCTION OF AMORPHOUS SOFT MAGNETIC ALLOY SINTERED BODY

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To improve soft magnetic properties such as magnetic permeability and coercive force by sintering planar particles each other with at least a part of the boundary between the adjacent other planar particles left.

SOLUTION: The planar particles 3 composing a sintered body are the ones obtd. by pulverizing a metallic glass alloy thin strip or obtd. by mistily spraying the molten metal of a metallic glass alloy against rotating cooling rolls and executing cooling and are composed of a pair of sheet faces 4, 4. The planar particles 3 are sintered so as to be mutually adhered in a state in which their shapes are retained as they are, and there is a state in which the boundaries of the planar

particles 3 are present in the structure. Thus, the electric resistance is made high in the boundaries, the specified resistance as that of the whole of the structure is increased, and the loss of eddy current is reduced, by which the magnetic



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2000-345308
(P2000-345308A)

(43) 公開日 平成12年12月12日 (2000. 12. 12)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テ-マ-ト [*] (参考)
C 2 2 C 45/02		C 2 2 C 45/02	A 4 K 0 1 8
B 2 2 F 1/00		B 2 2 F 1/00	W 5 E 0 4 1
			L
C 2 2 C 33/02		C 2 2 C 33/02	3 0 3 S
		38/00	3 0 4
38/00	3 0 3		

審査請求 未請求 請求項の数35 O L (全 24 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平11-234778

(22) 出願日 平成11年8月20日 (1999. 8. 20)

(31) 優先権主張番号 特願平11-84932

(32) 優先日 平成11年3月26日 (1999. 3. 26)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000010098

アルプス電気株式会社

東京都大田区雪谷大塚町1番7号

(71) 出願人 591112625

井上 明久

宮城県仙台市青葉区川内元支倉35番地 川

内住宅11-806

(72) 発明者 吉田 昌二

東京都大田区雪谷大塚町1番7号 アルプ

ス電気株式会社内

(74) 代理人 100064908

弁理士 志賀 正武 (外7名)

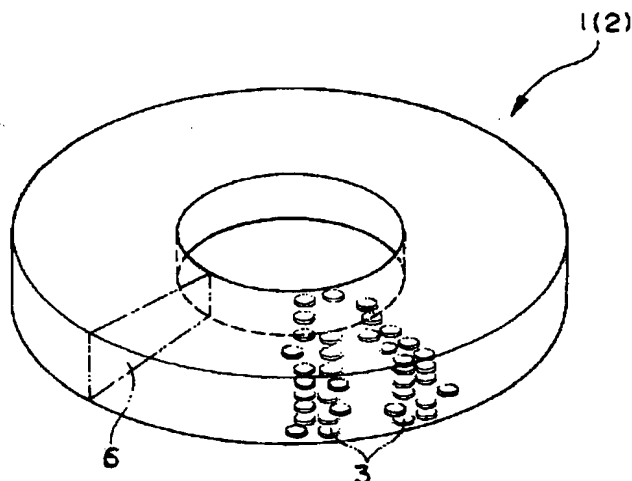
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 非晶質軟磁性合金焼結体及び非晶質軟磁性合金磁心及び非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 透磁率、保磁力等の軟磁気特性に優れた非晶質軟磁性合金焼結体を提供する。

【解決手段】 板状粒子3…を含有する軟磁性合金粉体が焼結されてなるものであって、板状粒子3…同士が、隣接する他の板状粒子3…との境界の少なくとも一部を残して焼結されていることを特徴とする非晶質軟磁性合金焼結体1を採用する。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 板状粒子を含有する軟磁性合金粉体が焼結されてなるものであって、前記板状粒子同士が、隣接する他の板状粒子との境界の少なくとも一部を残して焼結されていることを特徴とする非晶質軟磁性合金焼結体。

【請求項2】 前記軟磁性合金粉体に含まれる板状粒子の少なくとも80%以上が、隣接する他の板状粒子との境界を残して焼結されていることを特徴とする請求項1記載の非晶質軟磁性合金焼結体。

【請求項3】 前記の各板状粒子は、それぞれの板面方向を一軸方向に配向して焼結されていることを特徴とする請求項1または請求項2に記載の非晶質軟磁性合金焼結体。

【請求項4】 前記軟磁性合金粉体に含まれる板状粒子の少なくとも80%以上がそれぞれの板面方向を一軸方向に配向させて焼結され、かつ前記一軸方向に対する各々の板面方向のずれ角が 20° 以下であることを特徴とする請求項1ないし請求項3のいずれかに記載の非晶質軟磁性合金焼結体。

【請求項5】 前記板状粒子の厚さ方向が同一方向に配向されていることを特徴とする請求項3または請求項4に記載の非晶質軟磁性合金焼結体。

【請求項6】 前記板状粒子が非晶質相を主相とする軟磁性合金からなることを特徴とする請求項1ないし請求項5のいずれかに記載の非晶質軟磁性合金焼結体。

【請求項7】 前記軟磁性合金は、 $\Delta T_x = T_x - T_g$ （ただし T_x は結晶化開始温度、 T_g はガラス遷移温度を示す。）の式で表される過冷却液体の温度間隔 ΔT_x が20K以上の金属ガラス合金であることを特徴とする請求項6に記載の非晶質軟磁性合金焼結体。

【請求項8】 前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであることを特徴とする請求項7に記載の非晶質軟磁性合金焼結体。

Al: 1~10原子%
Ga: 0.5~4原子%
P: 15原子%以下
C: 7原子%以下
B: 2~10原子%
Si: 15原子%以下
Fe: 残部

【請求項9】 前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであることを特徴とする請求項7に記載の非晶質軟磁性合金焼結体。

(Fe_{1-a-b}Co_aNi_b)_{100-x-y}D_xB_y
但し、DはZr、Nb、Ta、Hf、Mo、Ti、Vのうちの1種または2種以上からなる元素であり、a、b、x、yは、 $0 \leq a \leq 0.29$ 、 $0 \leq b \leq 0.43$ 、 $5 \text{ 原子}\% \leq x \leq 20 \text{ 原子}\%$ 、 $10 \text{ 原子}\% \leq y \leq 22 \text{ 原子}\%$ である。

【請求項10】 前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであることを特徴とする請求項7に記載の非晶質軟磁性合金焼結体。

Co_{100-x-y-z-w}T_xM_yL_zB_w

ただし、TはFeおよびNiのうちの1種または2種であり、MはTi、Zr、Nb、Ta、Hf、Mo、Wのうちの1種または2種以上であり、LはCr、Mn、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Pt、Al、Ga、Si、Ge、C、Pのうちの1種または2種以上であり、x、y、z、wは、 $0 \text{ 原子}\% \leq x \leq 30 \text{ 原子}\%$ 、 $5 \text{ 原子}\% \leq y \leq 15 \text{ 原子}\%$ 、 $0 \text{ 原子}\% \leq z \leq 10 \text{ 原子}\%$ 、 $15 \text{ 原子}\% \leq w \leq 22 \text{ 原子}\%$ である。

【請求項11】 相対密度が98%以上であることを特徴とする請求項1ないし請求項10のいずれかに記載の非晶質軟磁性合金焼結体。

【請求項12】 板状粒子を含有する軟磁性合金粉体が焼結されてなるものであって、前記板状粒子同士が、隣接する他の板状粒子との境界の少なくとも一部を残して焼結されていると共に各板状粒子の板面方向が磁路方向に一軸配向されていることを特徴とする非晶質軟磁性合金磁心。

【請求項13】 前記軟磁性合金粉体に含まれる板状粒子の少なくとも80%以上が、隣接する他の板状粒子との境界を残し、かつそれぞれの板面方向を磁路方向に一軸配向させていると共に、前記一軸方向に対する各々の板面方向のずれ角が 20° 以下であることを特徴とする請求項12に記載の非晶質軟磁性合金磁心。

【請求項14】 形状が円環状とされと共に、前記磁路方向がその円周方向に一致することを特徴とする請求項12または請求項13に記載の非晶質軟磁性合金磁心。

【請求項15】 前記板状粒子の厚さ方向が同一方向に配向されていることを特徴とする請求項12ないし請求項14のいずれかに記載の非晶質軟磁性合金磁心。

【請求項16】 前記板状粒子が非晶質相を主相とする軟磁性合金からなることを特徴とする請求項12、13、15のいずれかに記載の非晶質軟磁性合金磁心。

【請求項17】 前記軟磁性合金は、 $\Delta T_x = T_x - T_g$ （ただし T_x は結晶化開始温度、 T_g はガラス遷移温度を示す。）の式で表される過冷却液体の温度間隔 ΔT_x が20K以上の金属ガラス合金であることを特徴とする請求項16に記載の非晶質軟磁性合金磁心。

【請求項18】 前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであることを特徴とする請求項17に記載の非晶質軟磁性合金磁心。

Al: 1~10原子%
Ga: 0.5~4原子%
P: 15原子%以下
C: 7原子%以下
B: 2~10原子%

Si : 15原子%以下

Fe : 残部

【請求項19】 前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであることを特徴とする請求項17に記載の非晶質軟磁性合金磁心。

$(\text{Fe}_{1-a-b}\text{Co}_a\text{Ni}_b)_{100-x-y}\text{D}_x\text{B}_y$

但し、DはZr、Nb、Ta、Hf、Mo、Ti、Vのうちの1種または2種以上からなる元素であり、a、b、x、yは、 $0 \leq a \leq 0.29$ 、 $0 \leq b \leq 0.43$ 、 $5\text{原子}\% \leq x \leq 20\text{原子}\%$ 、 $10\text{原子}\% \leq y \leq 22\text{原子}\%$ である。

【請求項20】 前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであることを特徴とする請求項17に記載の非晶質軟磁性合金磁心。

$\text{Co}_{100-x-y-z-w}\text{T}_x\text{M}_y\text{L}_z\text{B}_w$

ただし、TはFeおよびNiのうちの1種または2種であり、MはTi、Zr、Nb、Ta、Hf、Mo、Wのうちの1種または2種以上であり、LはCr、Mn、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Pt、Al、Ga、Si、Ge、C、Pのうちの1種または2種以上であり、x、y、z、wは、 $0\text{原子}\% \leq x \leq 30\text{原子}\%$ 、 $5\text{原子}\% \leq y \leq 15\text{原子}\%$ 、 $0\text{原子}\% \leq z \leq 10\text{原子}\%$ 、 $15\text{原子}\% \leq w \leq 22\text{原子}\%$ である。

【請求項21】 相対密度が98%以上であることを特徴とする請求項12ないし請求項20のいずれかに記載の非晶質軟磁性合金磁心。

【請求項22】 板状粒子が含まれてなる軟磁性合金粉体を、該板状粒子同士が境界の少なくとも一部を残して接するように焼結することを特徴とする非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法。

【請求項23】 金属ガラス合金薄帯を粉碎して分級することにより前記板状粒子が含まれてなる前記軟磁性合金粉体を得る粉体製造工程を具備することを特徴とする請求項22に記載の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法。

【請求項24】 金属ガラス合金の溶湯を、回転する冷却ロールに霧状に吹き付けることにより前記板状粒子が含まれてなる前記軟磁性合金粉体を得る粉体製造工程を具備することを特徴とする請求項22に記載の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法。

【請求項25】 前記軟磁性合金粉体を、金型に充填して静磁場を印加する粉体充填工程を具備してなることを特徴とする請求項22ないし請求項24のいずれかに記載の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法。

【請求項26】 前記軟磁性合金粉体を焼結した後に、前記軟磁性合金粉体の結晶化開始温度以下の温度で熱処理する熱処理工程を具備してなることを特徴とする請求項22ないし請求項25のいずれかに記載の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法。

【請求項27】 前記軟磁性合金粉体を焼結する際に、

前記軟磁性合金粉体に一軸圧力を印加しつつ焼結することを特徴とする請求項22に記載の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法。

【請求項28】 前記軟磁性合金粉体を焼結する際に、得られる焼結体の相対密度が98%以上となるように前記軟磁性合金粉体に前記一軸圧力を印加することを特徴とする請求項22または請求項27に記載の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法。

【請求項29】 前記軟磁性合金粉体の結晶化開始温度以下の温度で前記軟磁性合金粉体を焼結することを特徴とする請求項22、27、28のいずれかに記載の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法。

【請求項30】 前記粉体製造工程において、前記板状粒子の表面に酸化皮膜を形成することを特徴とする請求項23または請求項24のいずれかに記載の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法。

【請求項31】 前記板状粒子が非晶質相を主相とする軟磁性合金からなることを特徴とする請求項22ないし請求項24のいずれかに記載の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法。

【請求項32】 前記軟磁性合金は、 $\Delta T_x = T_x - T_g$ （ただし T_x は結晶化開始温度、 T_g はガラス遷移温度を示す。）の式で表される過冷却液体の温度間隔 ΔT_x が20K以上の金属ガラス合金であることを特徴とする請求項31に記載の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法。

【請求項33】 前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであることを特徴とする請求項32に記載の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法。

Al : 1~10原子%

Ga : 0.5~4原子%

P : 15原子%以下

C : 7原子%以下

B : 2~10原子%

Si : 15原子%以下

Fe : 残部

【請求項34】 前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであることを特徴とする請求項32に記載の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法。

$(\text{Fe}_{1-a-b}\text{Co}_a\text{Ni}_b)_{100-x-y}\text{D}_x\text{B}_y$

但し、DはZr、Nb、Ta、Hf、Mo、Ti、Vのうちの1種または2種以上からなる元素であり、a、b、x、yは、 $0 \leq a \leq 0.29$ 、 $0 \leq b \leq 0.43$ 、 $5\text{原子}\% \leq x \leq 20\text{原子}\%$ 、 $10\text{原子}\% \leq y \leq 22\text{原子}\%$ である。

【請求項35】 前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであることを特徴とする請求項32に記載の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法。

$\text{Co}_{100-x-y-z-w}\text{T}_x\text{M}_y\text{L}_z\text{B}_w$

ただし、TはFeおよびNiのうちの1種または2種であり、MはTi、Zr、Nb、Ta、Hf、Mo、Wの

うちの1種または2種以上であり、LはCr、Mn、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Pt、Al、Ga、Si、Ge、C、Pのうちの1種または2種以上であり、 x 、 y 、 z 、 w は、 $0 \text{ 原子}\% \leq x \leq 30 \text{ 原子}\%$ 、 $5 \text{ 原子}\% \leq y \leq 15 \text{ 原子}\%$ 、 $0 \text{ 原子}\% \leq z \leq 10 \text{ 原子}\%$ 、 $15 \text{ 原子}\% \leq w \leq 22 \text{ 原子}\%$ である。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、磁気ヘッドやトランスまたはモータのコアなどに好適に用いられる非晶質軟磁性合金焼結体及び非晶質軟磁性合金磁心及び非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】軟磁性合金材料で従来この種の用途に使用されているものとして、例えばFe-Si合金、Fe-Si-Al合金（センダスト）、Ni-Fe合金（パーマロイ）、Fe基およびCo基の非晶質合金等が挙げられる。ところで、DCモータのコアなどに軟磁性合金材料を適用する際には、高密度のバルク形状とすることが有利であるが、従来、上記の非晶質合金は、溶融金属を急冷することによって作製されており、得られる形状は、薄帯、線材、粉末、薄膜に限定されていた。

【0003】そこで最近では、過冷却液体領域を有する金属ガラス合金の粉体が焼結されてなる金属ガラス焼結体が提案されている。この金属ガラス焼結体は、バルク状の焼結体であってその形状が限定されないため、磁気ヘッド、トランス、モータのコアなどに好適に用いることができる。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】しかし、従来の金属ガラス焼結体においては、透磁率、保磁力等の軟磁気特性が低いという課題があった。

【0005】本発明は上記の課題を解決するためになされたものであって、透磁率、保磁力等の軟磁気特性に優れた非晶質軟磁性合金焼結体を提供することを目的とする。

【0006】

【課題を解決するための手段】上記の目的を達成するために、本発明は以下の構成を採用した。本発明の非晶質軟磁性合金焼結体は、板状粒子を含有する軟磁性合金粉体が焼結されてなるものであって、前記板状粒子同士が、隣接する他の板状粒子との境界の少なくとも一部を残して焼結されていることを特徴とする。即ち本発明の非晶質軟磁性合金焼結体は、組織中に前記板状粒子の境界が存在していることを特徴とする。また、前記軟磁性合金粉体に含まれる板状粒子の少なくとも80%以上が、隣接する他の板状粒子との境界を残して焼結されていることが好ましい。

【0007】かかる非晶質軟磁性合金焼結体は、板状粒子がその形状を維持した状態で相互に焼結されてなるも

ので、組織中に前記板状粒子の境界が存在しており、この境界において電気抵抗が大きくなるので、渦電流損が低減されて高周波領域における透磁率を高くすることが可能になる。また、板状粒子が完全に溶解されるに至らず板状粒子同士が圧着された状態であるので、結晶質相が析出することがなく、優れた軟磁気特性を発現させることが可能になる。

【0008】また、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体は、先に記載の非晶質軟磁性合金焼結体であって、前記の各板状粒子が、それぞれの板面方向を一軸方向に配向して焼結されていることを特徴とする。特に、前記軟磁性合金粉体に含まれる板状粒子の少なくとも80%以上がそれぞれの板面方向を一軸方向に配向させて焼結され、かつ前記一軸方向に対する各々の板面方向のずれ角が 20° 以下であることが好ましい。更に前記板状粒子の厚さ方向が同一方向に配向していることがより好ましい。

【0009】かかる非晶質軟磁性合金焼結体によれば、板状粒子の板面方向が一軸方向に配向し、かつ一軸方向に対する板面方向のずれ角が 20° 以下であるので、反磁界による軟磁気特性への悪影響を低減することが可能になる。

【0010】更に、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体は、先に記載の非晶質軟磁性合金焼結体であって、前記板状粒子が非晶質相を主相とする軟磁性合金からなることを特徴とする。さらにまた、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体は、先に記載の非晶質軟磁性合金焼結体であって、前記軟磁性合金が、 $\Delta T_x = T_x - T_g$ （ただし T_x は結晶化開始温度、 T_g はガラス遷移温度を示す。）の式で表される過冷却液体の温度間隔 ΔT_x が 20 K 以上である金属ガラス合金であることを特徴とする。

【0011】かかる非晶質軟磁性合金焼結体によれば、板状粒子を構成する軟磁性合金が過冷却液体の温度間隔 ΔT_x を有する金属ガラス合金であり、この板状粒子が温度間隔 ΔT_x の領域まで加熱されると、板状粒子がニュートン流体のごとき挙動を示して板状粒子の流動性が大きくなると共に、板状粒子のごく一部が相互拡散するので、板状粒子が容易に焼結されて成形され、緻密な焼結体を構成することが可能となる。

【0012】本発明の非晶質軟磁性合金焼結体においては、前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであることが好ましい。

Al : 1~10原子%

Ga : 0.5~4原子%

P : 15原子%以下

C : 7原子%以下

B : 2~10原子%

Si : 15原子%以下

Fe : 残部

また、上記Siの添加量は1.5~3.5原子%である

ことがより好ましい。

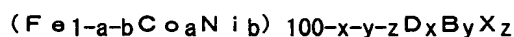
【0013】また、上記の金属ガラス合金において、原子%におけるSiとPの比率を $0.11 \leq Si / (Si + P) \leq 0.28$ とすると、過冷却液体の温度間隔 ΔT_x をより向上させ、非晶質相を主相とする非晶質軟磁性合金焼結体が得られる点で好ましい。また、上記の組成に、Geが4原子%以下含有されていてもよく、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Zr及びCrのうち少なくとも1種以上が0~7原子%含有されていてもよく、0~10原子%のNiと0~30原子%のCoのうち少なくとも一方が含有されていてもよい。

【0014】また、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体においては、前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであることが好ましい。



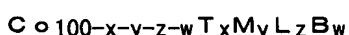
但し、DはZr、Nb、Ta、Hf、Mo、Ti、Vのうちの1種または2種以上からなる元素であり、a、b、x、yは、 $0 \leq a \leq 0.29$ 、 $0 \leq b \leq 0.43$ 、 $5 \text{原子}\% \leq x \leq 20 \text{原子}\%$ 、 $10 \text{原子}\% \leq y \leq 22 \text{原子}\%$ である。また、前記の $(Fe_{1-a-b}Co_aNi_b)_{100-x-y}D_xBy$ なる組成式において、 $0.042 \leq a \leq 0.29$ 、 $0.042 \leq b \leq 0.43$ の関係にされてなるものであっても良い。

【0015】また、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体においては、前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであってもよい。



但し、DはZr、Nb、Ta、Hf、Mo、Ti、Vのうちの1種または2種以上からなる元素であり、XはCr、W、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Pt、Al、Si、Ge、C、Pのうちの1種または2種以上からなる元素であり、a、b、x、y、zは、 $0 \leq a \leq 0.29$ 、 $0 \leq b \leq 0.43$ 、 $5 \text{原子}\% \leq x \leq 20 \text{原子}\%$ 、 $10 \text{原子}\% \leq y \leq 22 \text{原子}\%$ 、 $0 \text{原子}\% \leq z \leq 5 \text{原子}\%$ である。また、前記の $(Fe_{1-a-b}Co_aNi_b)_{100-x-y-z}D_xByX_z$ なる組成式において、 $0.042 \leq a \leq 0.29$ 、 $0.042 \leq b \leq 0.43$ の関係にされてなるものであっても良い。

【0016】また、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体においては、前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであることが好ましい。



ただし、TはFeおよびNiのうちの1種または2種であり、MはTi、Zr、Nb、Ta、Hf、Mo、Wのうちの1種または2種以上であり、LはCr、Mn、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Pt、Al、Ga、Si、Ge、C、Pのうちの1種または2種以上であり、x、y、z、wは、 $0 \text{原子}\% \leq x \leq 30 \text{原子}\%$ 、 $5 \text{原子}\% \leq y \leq 15 \text{原子}\%$ 、 $0 \text{原子}\% \leq z \leq 10 \text{原子}\%$ 、 $15 \text{原子}\% \leq w \leq 22 \text{原子}\%$ である。また、上記のxは、8

原子% $\leq x \leq 30$ 原子%であることが好ましく、 $14 \text{原子}\% \leq x \leq 21 \text{原子}\%$ であることがより好ましい。また、Mが $(M'_{1-c}M''_c)$ で表され、M'はZr、Hfのうちの1種または2種、M''はTi、Nb、Ta、W、Moのうちの1種または2種以上であり、cは $0.2 \leq c \leq 1$ であることが好ましい。

【0017】更に、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体は、先に記載の非晶質軟磁性合金焼結体であって、相対密度が98%以上であることを特徴とする。かかる非晶質軟磁性合金焼結体によれば、相対密度が高く、板状粒子同士が緻密に焼結されて組織中に空隙がほとんど残存しないので、軟磁気特性に優れた非晶質軟磁性合金焼結体を構成することが可能になる。

【0018】本発明の非晶質軟磁性合金磁心は、板状粒子を含有する軟磁性合金粉体が焼結されてなるものであって、前記板状粒子同士が、隣接する他の板状粒子との境界の少なくとも一部を残して焼結されていると共に各板状粒子の板面方向が磁路方向に一軸配向されていることを特徴とする。即ち本発明の非晶質軟磁性合金磁心は、組織中に前記板状粒子の境界が存在していると共に、前記板状粒子の板面方向が磁路方向に配向されていることを特徴とする。特に、前記軟磁性合金粉体に含まれる板状粒子の少なくとも80%以上が、隣接する他の板状粒子との境界を残し、かつそれぞれの板面方向を磁路方向に一軸配向させていると共に、前記一軸方向に対する各々の板面方向のずれ角が 20° 以下であることが好ましい。

【0019】かかる非晶質軟磁性合金磁心によれば、組織中の板状粒子が磁路方向に配向しているので、反磁界による軟磁気特性への悪影響が低減されて、磁心の損失を小さくすることが可能になる。

【0020】また、本発明の非晶質軟磁性合金磁心は、先に記載の非晶質軟磁性合金磁心であって、形状が円環状とされると共に、前記磁路方向がその円周方向に一致することを特徴とする。特に前記板状粒子の厚さ方向が同一方向に配向されていることが好ましい。かかる磁心によれば、トランスのコアとして好適に用いることが可能となる。

【0021】更に、本発明の非晶質軟磁性合金磁心は、先に記載の非晶質軟磁性合金磁心であって、前記板状粒子が非晶質相を主相とする軟磁性合金からなるものであることを特徴とする。更にまた、本発明の非晶質軟磁性合金磁心は、先に記載の非晶質軟磁性合金磁心であって、前記軟磁性合金が、 $\Delta T_x = T_x - T_g$ （ただし T_x は結晶化開始温度、 T_g はガラス遷移温度を示す。）の式で表される過冷却液体の温度間隔 ΔT_x が 20 K 以上である金属ガラス合金からなることを特徴とする。

【0022】かかる非晶質軟磁性合金磁心によれば、板状粒子を構成する軟磁性合金が過冷却液体の温度間隔 ΔT_x を有する金属ガラス合金であり、この板状粒子が温

度間隔 ΔT_x の領域まで加熱されると、板状粒子がニュートン流体のごとき挙動を示して板状粒子の流動性が大きくなると共に、板状粒子のごく一部が相互拡散するので、板状粒子が容易に焼結されて成形され、緻密な磁心を構成することが可能となる。

【0023】本発明の非晶質軟磁性合金磁心においては、前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであることが好ましい。

Al: 1~10原子%

Ga: 0.5~4原子%

P: 15原子%以下

C: 7原子%以下

B: 2~10原子%

Si: 15原子%以下

Fe: 残部

また、上記Siの添加量は1.5~3.5原子%であることがより好ましい。

【0024】また、上記の金属ガラス合金において、原子%におけるSiとPの比率を $0.11 \leq Si / (Si + P) \leq 0.28$ とすると、過冷却液体の温度間隔 ΔT_x をより向上させ、非晶質相を主相とする非晶質軟磁性合金焼結体が得られる点で好ましい。また、上記の組成に、Geが4原子%以下含有されていてもよく、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Zr及びCrのうち少なくとも1種以上が0~7原子%含有されていてもよく、0~10原子%のNiと0~30原子%のCoのうち少なくとも一方が含有されていてもよい。

【0025】また、本発明の非晶質軟磁性合金磁心においては、前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであることが好ましい。

(Fe_{1-a-b}Co_aNi_b)_{100-x-y}D_xBy

但し、DはZr、Nb、Ta、Hf、Mo、Ti、Vのうちの1種または2種以上からなる元素であり、a、b、x、yは、 $0 \leq a \leq 0.29$ 、 $0 \leq b \leq 0.43$ 、 $5\text{原子}\% \leq x \leq 20\text{原子}\%$ 、 $10\text{原子}\% \leq y \leq 22\text{原子}\%$ である。また、前記の(F_{1-a-b}Co_aNi_b)_{100-x-y}D_xByなる組成式において、 $0.042 \leq a \leq 0.29$ 、 $0.042 \leq b \leq 0.43$ の関係にされてなるものであってもよい。

【0026】また、本発明の非晶質軟磁性合金磁心においては、前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであってもよい。

(Fe_{1-a-b}Co_aNi_b)_{100-x-y-z}D_xByX_z

但し、DはZr、Nb、Ta、Hf、Mo、Ti、Vのうちの1種または2種以上からなる元素であり、XはCr、W、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Pt、Al、Si、Ge、C、Pのうちの1種または2種以上からなる元素であり、a、b、x、y、zは、 $0 \leq a \leq 0.29$ 、 $0 \leq b \leq 0.43$ 、 $5\text{原子}\% \leq x \leq 20\text{原子}\%$ 、 $10\text{原子}\% \leq y \leq 22\text{原子}\%$ 、 $0\text{原子}\% \leq z \leq 5\text{原子}\%$ で

ある。また、前記の(F_{1-a-b}Co_aNi_b)_{100-x-y-z}D_xByX_zなる組成式において、 $0.042 \leq a \leq 0.29$ 、 $0.042 \leq b \leq 0.43$ の関係にされてなるものであってもよい。

【0027】更に、本発明の非晶質軟磁性合金磁心においては、前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであることが好ましい。

Co_{100-x-y-z-w}T_xMyL_zB_w

ただし、TはFeおよびNiのうちの1種または2種であり、MはTi、Zr、Nb、Ta、Hf、Mo、Wのうちの1種または2種以上であり、LはCr、Mn、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Pt、Al、Ga、Si、Ge、C、Pのうちの1種または2種以上であり、x、y、z、wは、 $0\text{原子}\% \leq x \leq 30\text{原子}\%$ 、 $5\text{原子}\% \leq y \leq 15\text{原子}\%$ 、 $0\text{原子}\% \leq z \leq 10\text{原子}\%$ 、 $15\text{原子}\% \leq w \leq 22\text{原子}\%$ である。また、上記のxは、 $8\text{原子}\% \leq x \leq 30\text{原子}\%$ であることが好ましく、 $14\text{原子}\% \leq x \leq 21\text{原子}\%$ であることがより好ましい。また、Mが(M'_{1-c}M''_c)で表され、M'はZr、Hfのうちの1種または2種、M''はTi、Nb、Ta、W、Moのうちの1種または2種以上であり、cは $0.2 \leq c \leq 1$ であることが好ましい。

【0028】また、本発明の非晶質軟磁性合金磁心は、先に記載の非晶質軟磁性合金磁心であって、相対密度が98%以上であることを特徴とする。かかる非晶質軟磁性合金磁心によれば、相対密度が高く、板状粒子同士が緻密に焼結されて組織中に空隙がほとんど残存しないので、軟磁気特性に優れた非晶質軟磁性合金磁心を構成することが可能になる。

【0029】本発明の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法は、板状粒子が含まれてなる軟磁性合金粉体を、該板状粒子同士が境界の少なくとも一部を残して接するように焼結することを特徴とする。即ち、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法は、板状粒子からなる軟磁性合金粉体を、前記板状粒子の境界が残存するように焼結することを特徴とする。

【0030】かかる非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法によれば、板状粒子がその形状を維持した状態で相互に焼結されるので、組織中に前記板状粒子の境界を存在させることができ、この境界において電気抵抗が大きくなるので、渦電流損が低減されて高周波領域における透磁率が高い非晶質軟磁性合金焼結体を製造することが可能になる。

【0031】また、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法は、先に記載の製造方法であって、金属ガラス合金薄帯を粉砕した後に分級することにより前記板状粒子からなる前記軟磁性合金粉体を得る粉体製造工程を具備することを特徴とする。かかる非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法によれば、分級によって板状粒子の形状を制御して板状粒子の長径と短径の比である扁平率を制御

でき、この扁平率を高くすると板状粒子が焼結の際に配向しやすくなり、軟磁気特性に優れた非晶質軟磁性合金焼結体を製造することが可能となる。

【0032】また、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法は、先に記載の製造方法であって、金属ガラス合金の溶湯を、回転する冷却ロールに霧状に吹き付けることにより前記板状粒子が含まれてなる前記軟磁性合金粉末を得る粉末製造工程を具備することを特徴とする。かかる非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法によれば、霧状の金属ガラス合金の溶湯を冷却ロールに吹き付けるだけで板状粒子が得られるので、非晶質軟磁性合金焼結体の製造工程を簡略化することができる。

【0033】更に、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法は、先に記載の製造方法であって、前記軟磁性合金粉末を、金型に充填して静磁場をかける粉末充填工程を具備してなることを特徴とする。かかる非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法によれば、金型に充填して静磁場をかけることにより、板状粒子がより配列されやすくなり、軟磁気特性の向上を図ることが可能となる。

【0034】また、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法は、先に記載の製造方法であって、前記軟磁性合金粉末を焼結した後に、前記軟磁性合金粉末の結晶化開始温度以下の温度で熱処理する熱処理工程を具備してなることを特徴とする。かかる非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法によれば、軟磁性合金粉末を焼結した後に熱処理するので、焼結の際に生じた機械的歪みを除去することができ、非晶質軟磁性合金焼結体の軟磁気特性を向上させることが可能になる。

【0035】本発明の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法では、前記の焼結を行う際に、前記軟磁性合金粉末に一軸圧力を印加しつつ前記軟磁性合金粉末を焼結することが好ましい。かかる非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法によれば、焼結の際に一軸圧力をかけるので、板状粒子がより配向されやすくなり、軟磁気特性の向上を図ることが可能となる。

【0036】また、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法では、前記の焼結を行う際に、得られる焼結体の相対密度が98%以上となるように前記軟磁性合金粉末に前記一軸圧力を印加することがより好ましい。かかる非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法によれば、一軸圧力を印加して相対密度が98%以上になるように焼結するので、板状粒子同士が緻密に焼結されて組織中に空隙がほとんど残存することがなく、軟磁気特性に優れて損失が小さい非晶質軟磁性合金焼結体を製造することが可能となる。

【0037】更に、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法では、前記の焼結を行う際に、前記軟磁性合金粉末の結晶化開始温度以下の温度で前記軟磁性合金粉末を焼結することが好ましい。かかる非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法によれば、軟磁性合金粉末をその結晶化

開始温度以下の温度で焼結するので、結晶質相析出開始による結晶磁気異方性の発生が防止されて、軟磁気特性に優れた非晶質軟磁性合金焼結体を製造することが可能になる。

【0038】更にまた、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法では、前記粉末製造工程において、前記板状粒子の表面に酸化皮膜を形成することが好ましい。かかる非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法によれば、板状粒子の境界が酸化皮膜で構成されることになるので、この境界における電気抵抗が更に大きくなって渦電流損が低減され、高周波領域における透磁率がより高い非晶質軟磁性合金焼結体を製造することが可能になる。また、この酸化皮膜は高い融点を示すので、焼結されても溶融することがなく焼結体の組織中に残存し、板状粒子の境界が存在する非晶質軟磁性合金焼結体を容易に製造することが可能になる。

【0039】また、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法は、先に記載の製造方法であって、前記板状粒子が非晶質相を主相とする軟磁性合金からなることを特徴とする。かかる非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法によれば、板状粒子が非晶質相を主相とする軟磁性合金からなり、この板状粒子の粒界が組織中に残存するように焼結するので、板状粒子が溶解されて結晶質相が析出することがなく、非晶質相を主体とする焼結体を製造することが可能となる。

【0040】また、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法は、先に記載の製造方法であって、前記軟磁性合金が、 $\Delta T_x = T_x - T_g$ （ただし T_x は結晶化開始温度、 T_g はガラス遷移温度を示す。）の式で表される過冷却液体の温度間隔 ΔT_x が20K以上である金属ガラス合金であることを特徴とする。かかる非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法によれば、板状粒子を構成する軟磁性合金が過冷却液体の温度間隔 ΔT_x を有する金属ガラス合金であり、この板状粒子が温度間隔 ΔT_x の領域まで加熱されると、板状粒子がニュートン流体のごとき挙動を示して板状粒子の流動性が大きくなると共に、板状粒子のごく一部が相互拡散するので、この状態で一軸圧力を印加すると、板状粒子が容易に焼結されて緻密な焼結体を製造することが可能となる。

【0041】本発明の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法においては、前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであることが好ましい。

Al: 1~10原子%

Ga: 0.5~4原子%

P: 15原子%以下

C: 7原子%以下

B: 2~10原子%

Si: 15原子%以下

Fe: 残部

また、上記Siの添加量は1.5~3.5原子%である

ことがより好ましい。また、上記の金属ガラス合金において、原子%におけるSiとPの比率を、 $0.11 \leq Si / (Si + P) \leq 0.28$ とすると、過冷却液体の温度間隔 ΔT_x をより向上させ、非晶質相を主相とする非晶質軟磁性合金焼結体を得られる点で好ましい。また、上記の組成に、Geが4原子%以下含有されていてもよく、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Zr及びCrのうち少なくとも1種以上が0~7原子%含有されていてもよく、0~10原子%のNiと0~30原子%のCoのうち少なくとも一方が含有されていてもよい。

【0042】また、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法においては、前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであることが好ましい。

$(Fe_{1-a-b}Co_aNi_b)_{100-x-y}D_xBy$
但し、DはZr、Nb、Ta、Hf、Mo、Ti、Vのうちの1種または2種以上からなる元素であり、a、b、x、yは、 $0 \leq a \leq 0.29$ 、 $0 \leq b \leq 0.43$ 、 $5 \text{ 原子}\% \leq x \leq 20 \text{ 原子}\%$ 、 $10 \text{ 原子}\% \leq y \leq 22 \text{ 原子}\%$ である。また、前記の $(Fe_{1-a-b}Co_aNi_b)_{100-x-y}D_xBy$ なる組成式において、 $0.042 \leq a \leq 0.29$ 、 $0.042 \leq b \leq 0.43$ の関係にされてなるものであっても良い。

【0043】また、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法においては、前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであってもよい。

$(Fe_{1-a-b}Co_aNi_b)_{100-x-y-z}D_xByX_z$
但し、DはZr、Nb、Ta、Hf、Mo、Ti、Vのうちの1種または2種以上からなる元素であり、XはCr、W、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Pt、Al、Si、Ge、C、Pのうちの1種または2種以上からなる元素であり、a、b、x、y、zは、 $0 \leq a \leq 0.29$ 、 $0 \leq b \leq 0.43$ 、 $5 \text{ 原子}\% \leq x \leq 20 \text{ 原子}\%$ 、 $10 \text{ 原子}\% \leq y \leq 22 \text{ 原子}\%$ 、 $0 \text{ 原子}\% \leq z \leq 5 \text{ 原子}\%$ である。また、前記の $(Fe_{1-a-b}Co_aNi_b)_{100-x-y-z}D_xByX_z$ なる組成式において、 $0.042 \leq a \leq 0.29$ 、 $0.042 \leq b \leq 0.43$ の関係にされてなるものであっても良い。

【0044】更に、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体の製造方法においては、前記金属ガラス合金が、下記の組成で表されるものであることが好ましい。

$Co_{100-x-y-z-w}TxMyLzBw$
ただし、TはFeおよびNiのうちの1種または2種であり、MはTi、Zr、Nb、Ta、Hf、Mo、Wのうちの1種または2種以上であり、LはCr、Mn、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Pt、Al、Ga、Si、Ge、C、Pのうちの1種または2種以上であり、x、y、z、wは、 $0 \text{ 原子}\% \leq x \leq 30 \text{ 原子}\%$ 、 $5 \text{ 原子}\% \leq y \leq 15 \text{ 原子}\%$ 、 $0 \text{ 原子}\% \leq z \leq 10 \text{ 原子}\%$ 、 $15 \text{ 原子}\% \leq w \leq 22 \text{ 原子}\%$ である。また、上記のxは、 $8 \text{ 原子}\% \leq x \leq 30 \text{ 原子}\%$ であることが好ましく、 14 原

子 $\% \leq x \leq 21 \text{ 原子}\%$ であることがより好ましい。また、Mが $(M'_{1-c}M''_c)$ で表され、M'はZr、Hfのうちの1種または2種、M''はTi、Nb、Ta、W、Moのうちの1種または2種以上であり、cは $0.2 \leq c \leq 1$ であることが好ましい。

【0045】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態を図面を参照して説明する。図1には、本発明の実施形態である非晶質軟磁性合金焼結体の一例を示す。この非晶質軟磁性合金焼結体1は、板状粒子3からなる軟磁性合金粉体が焼結されて円環状に成形されたもので、非晶質軟磁性合金磁心2として、例えばトランスのコア等に好適に適用されるものである。

【0046】図2には、非晶質軟磁性合金焼結体1（非晶質軟磁性合金磁心2）を構成する軟磁性合金粉体の板状粒子3を示す。この板状粒子3は、金属ガラス合金薄帯が粉砕されて得られたもの、あるいは金属ガラス合金の溶湯を回転する冷却ロールに霧状に吹き付けて冷却して得られたものであって、図示するようにその形状が板状とされており、一对の板面4、4を具備してなるものである。

【0047】図3には、図1に示す非晶質軟磁性合金焼結体1（非晶質軟磁性合金磁心2）の断面6の模式図を示す。図3に示すように、この非晶質軟磁性合金焼結体1（非晶質軟磁性合金磁心2）は、前記板状粒子同士が隣接する他の板状粒子との境界5の少なくとも一部を残して焼結されてなるものであり、図2に示した板状粒子3がその形状をほぼそのまま維持した状態で相互に密着して焼結されている。即ち、この非晶質軟磁性合金焼結体1は、組織中に板状粒子3の境界5が存在した状態となっており、板状粒子3が溶解して均一な組織を構成しているものではない。

【0048】このように、組織中に板状粒子3の境界5が存在するので、この境界5において電気抵抗が大きくなり、組織全体としての比抵抗が高くなって渦電流損が低減されて、高周波領域における透磁率を高くすることができる。また、上記の軟磁性合金粉体を構成する少なくとも80%以上の板状粒子同士が境界5を残して焼結されて組織中に残存していることが好ましい。残存する板状粒子が80%未満では、組織中に存在する板状粒子3…の境界5が減少して、非晶質軟磁性合金焼結体1の透磁率が低下するので好ましくない。

【0049】また、図1及び図3に示すように、円環状の非晶質軟磁性合金焼結体1においては、各板状粒子3…が、それぞれの板面4…の配向方向を円環の円周方向に沿うようにして焼結されている。この非晶質軟磁性合金焼結体1を磁心2として用いた場合には、磁路方向が円環の円周方向に一致するので、各板状粒子3…が、それぞれの板面4…の配向方向を磁路方向に一致させて配列することになる。特に、非晶質軟磁性合金焼結体1の

組織中に含まれる少なくとも80%以上の板状粒子3…が、その板面4の配向方向を円環の円周方向に沿うようにして焼結されていることが好ましい。

【0050】この板状粒子3…の配向方向について図4を参照して更に詳しく説明する。図4には板状粒子3…の配向方向を模式的に示した斜視図を示す。図4に示すように板状粒子3…は、それぞれの板面4…の板面方向（図中矢印Aに示す方向）を符号Bに示す矢印の軸線に沿って一軸方向に配向している。この矢印Bは、図1における円環状の非晶質軟磁性合金焼結体1の円周方向に相当する。

【0051】また同時に、各板状粒子3…は、図5に示すように、磁路方向に対する板面4の板面方向のずれ角度 α が20°以下であることが好ましい。

【0052】特に、図1に示すように、各板状粒子3…の厚さ方向が同一方向に配向していることが好ましい。即ち図1に示すように板状粒子3…の板面が図中上下方向に向いていることが好ましい。

【0053】板状粒子3…が上述のように規則正しく配向して焼結されていれば、反磁界による軟磁気特性への悪影響が低減されて、非晶質軟磁性合金焼結体1の軟磁気特性を高くすることができる。

【0054】なお、板状粒子3…は、その扁平率が所定の範囲内のものであることが好ましい。ここで扁平率とは、板状粒子3の板面4の長径をa、板状粒子3の厚さをbとしたとき、 $a/b \times 100$ (%)で表されるものである。扁平率が大きいほど板状粒子3…が同一方向に配向されやすくなるが、極端に扁平率が大きくなると、金型に充填する際に板状粒子3…同士の間空隙が残存し、非晶質軟磁性合金焼結体1（非晶質軟磁性合金磁心2）の相対密度を高くすることができないので好ましくない。なお、扁平率の好ましい範囲は150%以上6000%以下、より好ましい範囲は250%以上6000%以下、更に好ましい範囲は450%以上3000%以下とされる。また、板状粒子3の長径aは、45 μ m以上300 μ m以下であることが好ましく、45 μ m以上150 μ m以下であることがより好ましい。板状粒子3の厚さbは、5 μ m以上30 μ m以下であることが好ましく、5 μ m以上10 μ m以下であることがより好ましい。板状粒子3…の形状が上記の範囲内であれば、非晶質軟磁性合金焼結体1（非晶質軟磁性合金磁心2）の透磁率及び飽和磁束密度を高くすることができる。

【0055】また、非晶質軟磁性合金焼結体1（非晶質軟磁性合金磁心2）の相対密度が98%以上であることが好ましい。相対密度が98%以上であれば、板状粒子3…同士が緻密に焼結されるため組織中に空隙がほとんど残存することがないので、透磁率及び飽和磁束密度に優れた非晶質軟磁性合金焼結体1（非晶質軟磁性合金磁心2）を構成することができる。

【0056】本発明に係る非晶質軟磁性合金焼結体1を

構成する板状粒子3…は、非晶質相を主相とする軟磁性合金からなるもので、この軟磁性合金は、 $\Delta T_x = T_x - T_g$ （ただし T_x は結晶化開始温度、 T_g はガラス遷移温度を示す。）の式で表される過冷却液体の温度間隔 ΔT_x が20K以上である金属ガラス合金であることが好ましい。上記の金属ガラス合金は、組成によっては ΔT_x が40K以上、さらには50K以上という顕著な温度間隔を有し、これまでの知見から知られる他の合金からは全く予期されないものであり、軟磁性についても室温で優れた特性を有しており、これまでの知見に見られない全く新規なものである。

【0057】板状粒子3…を構成する軟磁性合金が過冷却液体の温度間隔 ΔT_x を有する金属ガラス合金であると、この板状粒子3…が温度間隔 ΔT_x の領域まで加熱された際に、板状粒子3…がニュートン流体のごとき挙動を示して板状粒子3…の流動性が大きくなると共に、板状粒子3…のごく一部が相互拡散するので、板状粒子3…同士が容易に焼結されて、緻密な焼結体（磁心）を構成することができる。

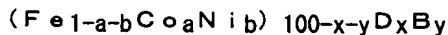
【0058】上記の金属ガラス合金の一例として、Feを主成分とし、他の金属と半金属とを含有したものを挙げることができる。このうち半金属元素としては、PとSiが必ず用いられ、しかもC、B、Geのうちの少なくとも1種以上の元素が用いられる。このとき原子%におけるSiとPの比率は、 $0 < Si / (Si + P) \leq 0.4$ を満たしており、好ましくは $0.1 < Si / (Si + P) \leq 0.35$ であり、より好ましくは $0.11 < Si / (Si + P) \leq 0.28$ である。他の金属とは、IIIB族及びIVB族の金属元素のうちの少なくとも1種のものが好適に用いられる。例えば、Al、Ga、In及びSnのうちの少なくとも1種以上の元素が用いられる。

【0059】より具体的に例示すると、Al：1～10原子%、Ga：0.5～4原子%、P：15原子%以下、C：7原子%以下、B：2～10原子%、Si：15原子%以下、Fe：残部であって、不可避不純物が含有されていても良い金属ガラス合金が挙げられる。このようにFe-Al-Ga-P-C-B系の金属ガラスにSiを添加し、しかもSiのPに対する添加比率が $0 < Si / (Si + P) \leq 0.4$ を満たすようにすることにより、過冷却液体の温度間隔 ΔT_x を向上させることができる。その結果、この金属ガラス合金からなる板状粒子を比較的高温で焼結させて、冷却速度が遅くなっても、過冷却液体の温度間隔 ΔT_x が大きいために結晶質相が析出することがなく、室温で優れた軟磁気特性を有する非晶質軟磁性合金焼結体1（非晶質軟磁性合金磁心2）を得ることができる。Siの含有量が多すぎると過冷却液体の温度間隔 ΔT_x が消滅するので、15%以下が好ましい。特に上記Siの添加量が原子%で1.5～3.5%であることが、より大きな過冷却液体の温度間

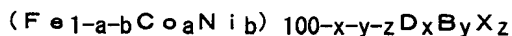
隔 ΔT_x が得られる点で好ましい。

【0060】上記Pの添加量は、原子%で7～9%が好ましく、より好ましくは5～8%である。また、上記Cの添加量は、原子%で2～7%であることがより好ましい。また、上記の組成に、Geが4原子%以下含有されていてもよく、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Zr及びCrのうち少なくとも1種以上が0～7原子%含有されていてもよく、0～10原子%のNiと0～30原子%のCoのうち少なくとも一方が含有されていてもよい。これらのいずれの場合の組成においても、本発明においては、過冷却液体の温度間隔 ΔT_x は、35K以上、組成によっては50K以上が得られる。

【0061】また、金属ガラス合金の他の例として、Feを主成分とし、以下の2つの組成式のいずれかで表されるものを用いることができる。即ち、



但し、DはZr、Nb、Ta、Hf、Mo、Ti、Vのうちの1種または2種以上からなる元素であり、a、b、x、yは、 $0 \leq a \leq 0.29$ 、 $0 \leq b \leq 0.43$ 、 $5 \text{ 原子}\% \leq x \leq 20 \text{ 原子}\%$ 、 $10 \text{ 原子}\% \leq y \leq 22 \text{ 原子}\%$ である。または、



但し、DはZr、Nb、Ta、Hf、Mo、Ti、Vのうちの1種または2種以上からなる元素であり、XはCr、W、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Pt、Al、Si、Ge、C、Pのうちの1種または2種以上からなる元素であり、a、b、x、y、zは、 $0 \leq a \leq 0.29$ 、 $0 \leq b \leq 0.43$ 、 $5 \text{ 原子}\% \leq x \leq 20 \text{ 原子}\%$ 、 $10 \text{ 原子}\% \leq y \leq 22 \text{ 原子}\%$ 、 $0 \text{ 原子}\% \leq z \leq 5 \text{ 原子}\%$ である。

【0062】上記の組成式において、主成分であるFeとCoとNiは、磁性を担う元素であり、高い飽和磁束密度と優れた軟磁気特性を得るために重要である。例えば、50K～60Kの ΔT_x を得るには、Coの組成比を示すaの値を $0 \leq a \leq 0.29$ 、Niの組成比を示すbの値を $0 \leq b \leq 0.43$ の範囲、60K以上の ΔT_x を得るには、Coの組成比を示すaの値を $0.042 \leq a \leq 0.29$ 、Niの組成比を示すbの値を $0.042 \leq b \leq 0.43$ の範囲とすることが好ましい。また、前記の範囲内において、良好な軟磁気特性を得るためには、Coの組成比を示すaの値を $0.042 \leq a \leq 0.25$ の範囲とすることが好ましく、高い飽和磁束密度を得るためには、Niの組成比を示すbの値を $0.042 \leq b \leq 0.1$ の範囲とすることがより好ましい。

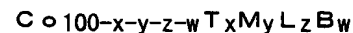
【0063】DはZr、Nb、Ta、Hf、Mo、Ti、Vのうちの1種又は2種以上からなる元素である。これらは非晶質相を生成させるために有効な元素であり、5原子%以上、20原子%以下の範囲であると良い。更に、高い磁気特性を得るためには、より好ましくは5原子%以上、15原子%以下にすると良い。これら

元素Mのうち、特にZrが有効である。Zrは、その一部をNb等の元素と置換することができるが、置換する場合の組成比cは、 $0 \leq c \leq 0.6$ の範囲であると、高い ΔT_x を得ることができるが、特に ΔT_x を80K以上とするには $0.2 \leq c \leq 0.4$ の範囲が好ましい。

【0064】Bは、高い非晶質形成能があり、本発明では10原子%以上、22原子%以下の範囲で添加する。Bが10原子%未満であると、 ΔT_x が消滅し、射出成形体が得られなくなるので好ましくなく、22原子%よりも大きくなると合金が脆くなるために好ましくない。より高い非晶質形成能と良好な磁気特性を得るためには、16原子%以上、20原子%以下とすることがより好ましい。

【0065】前記の組成系に更に、Xで示されるCr、W、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Pt、Al、Si、Ge、C、Pのうちの1種又は2種以上の元素を添加することもできる。本発明ではこれらの元素を0原子%以上、5原子%以下の範囲で添加することができる。これらの元素は主に耐食性を向上させる目的で添加するもので、この範囲を外れると軟磁気特性が低下する。また、この範囲を外れると非晶質形成能が劣化するために好ましくない。

【0066】更に、金属ガラス合金のその他の例として、Coを主成分とし、以下の組成式で表されるものを用いることができる。即ち、



但し、TはFeおよびNiのうちの1種または2種であり、MはTi、Zr、Nb、Ta、Hf、Mo、Wのうちの1種または2種以上であり、LはCr、Mn、Ru、Rh、Pd、Os、Ir、Pt、Al、Ga、Si、Ge、C、Pのうちの1種または2種以上であり、x、y、z、wは、 $0 \text{ 原子}\% \leq x \leq 30 \text{ 原子}\%$ 、 $5 \text{ 原子}\% \leq y \leq 15 \text{ 原子}\%$ 、 $0 \text{ 原子}\% \leq z \leq 10 \text{ 原子}\%$ 、 $15 \text{ 原子}\% \leq w \leq 22 \text{ 原子}\%$ である。

【0067】上記の組成の金属ガラス合金の構成元素は、上記の組成式で示されるように、一体となって非晶質でかつ軟磁性を有する合金を形成し、それぞれの元素群は下記の特性に寄与していると考えられる。

C群：合金の基となり磁性を担う。

T群：これも磁性を担う元素であるが、特にFeが8原子%以上配合されるとガラス遷移温度 T_g が生ずるようになり、過冷却液体状態が得易くなる。ただし30原子%を越えると磁歪が 1×10^{-6} より大となり好ましくない。

M群：過冷却液体領域の温度幅 ΔT_x を拡大する効果があり、非晶質を形成し易くする。配合量が5原子%未満ではガラス遷移温度 T_g が出現しなくなり好ましくない。また、15原子%を越えると磁気特性が低下し、特に、磁化が低下するため好ましくない。

L群：合金の耐食性を向上する効果がある。ただし、1

0原子%を越えて多量に配合すると磁気特性や非晶質形成性を劣化させるので好ましくない。

B : 高い非晶質形成能を有すると共に、15原子%～22原子%の配合によって比抵抗を増大させ、かつ熱安定性を高める効果がある。配合量 x は、15原子%未満では非晶質形成能が不十分で ΔT_x が減少または消滅する。また22原子%を越えると磁気特性を劣化させるので好ましくない。

【0068】前記の組成式で示されるC₀を主成分とする金属ガラス合金において、特に、 x が14原子% $\leq x \leq 21$ 原子%であるとき、過冷却液体領域の温度幅 ΔT_x が20K以上と広いものが好適に得られる。上記M群元素のうちでもZrもしくはHfが好ましく、特にZrが有効であり、その一部をTi、Nb、Ta、W、Moのうち1種または2種以上の元素と置換することができる。その場合の前記Mは、 $(M'_{1-c}M''_c)$ で表される。このとき、M'は、ZrもしくはHf、またはZrとHfを両方含んでいる元素である。また、M''はTi、Nb、Ta、W、Moのうちの1種または2種以上の元素であり、この中でもNb、Ta、W、Moが好ましい。置換する場合の組成比 c は、 $0.2 \leq c \leq 1$ の範囲、より好ましくは $0.2 \leq c \leq 0.8$ の範囲である。過冷却液体領域の温度幅 ΔT_x を拡大することができる。このようにM'の一部をTi、Nb、Ta、W、Moのうち1種または2種以上の元素と置換されている場合は、Feの配合量 x が8以下と少ない場合であっても T_g を有しており、 ΔT_x を認めることができる。

【0069】特に低磁歪性のC₀基金属ガラス合金が求められる場合には、前記の組成式においてT群(Feおよび/またはNi)の配合量 x を0原子%～20原子%の範囲内とすることが好ましい。これによって ΔT_x を広くすることができる。磁歪の絶対値を 10×10^{-6} より小さくすることができる。また、T群の配合量 x を0原子%～8原子%の範囲内とすることが好ましい。これによって、磁歪の絶対値を 5×10^{-6} より小さくすることができる。さらに、T群の配合量 x は、0原子%～3原子%の範囲内にされることがより好ましく。これによって磁歪の絶対値が 1×10^{-6} より小さくすることができる。

【0070】上述の非晶質軟磁性合金焼結体1(非晶質軟磁性合金磁心2)においては、過冷却液体の温度間隔 ΔT_x を有する金属ガラス合金からなる板状粒子3…が組織中に同一方向に配列されて焼結され、かつ相対密度が98%以上であるので、透磁率を高くすることができ、飽和磁束密度を大きくすることができる。

【0071】次に、本発明に係る非晶質軟磁性合金焼結体1の製造方法を説明する。この製造方法は、軟磁性合金粉体を得る粉体製造工程と、この軟磁性合金粉体を金型に充填する粉体充填工程と、金型に充填された軟磁性合金粉体を焼結する焼結工程と、熱処理とからなる。

【0072】粉体製造工程では、金属ガラス合金溶湯を粉碎、分級して板状粒子からなる軟磁性合金粉体を製造する。金属ガラス合金溶湯は、上述の組成の金属ガラス合金の溶湯を、回転する冷却ロールの冷却面に噴出させて急冷するいわゆるロール急冷法により製造される。次に、得られた金属ガラス合金溶湯を粉碎して粉砕体を製造する。粉砕には、ロータミル、ボールミル、ジェットミル、アトマイザー、磨砕機等を用いることができる。

【0073】次に、粉砕体を分級して、所定の扁平率を有する板状粒子からなる軟磁性合金粉体を得る。扁平率は、板状粒子3の板面4の長径を a 、板状粒子3の厚さを b としたとき、 $a/b \times 100$ (%)で表されるものである。扁平率が大きいほど、焼結の際に板状粒子3…を一定の方向に配列させやすくなるが、極端に扁平率が大きくなると、金型への充填の際に板状粒子3…同士の間に空隙が残存し、非晶質軟磁性合金焼結体1の相対密度を高くすることができなくなって、透磁率及び飽和磁束密度が低下するので好ましくない。なお、扁平率の好ましい範囲は150%以上6000%以下、より好ましい範囲は250%以上6000%以下、更に好ましい範囲は450%以上3000%以下とされる。また、板状粒子3の長径 a は、 $45 \mu m$ 以上 $300 \mu m$ 以下であることが好ましく、 $45 \mu m$ 以上 $150 \mu m$ 以下であることがより好ましい。板状粒子3の厚さ b は、 $5 \mu m$ 以上 $30 \mu m$ 以下であることが好ましく、 $5 \mu m$ 以上 $10 \mu m$ 以下であることがより好ましい。分級には、ふるい、振動ふるい、音波ふるい、気流式分級機等を用いることができる。このようにして、図2に示すような板状粒子の集合体である軟磁性合金粉体を得られる。

【0074】また、上記組成の金属ガラス合金の溶湯を、回転する冷却ロールに霧状に吹き付けることによって、板状粒子が含まれてなる軟磁性合金粉体を得ることができる。この場合は、溶湯を冷却ロールに霧状に吹き付けるだけで、軟磁性合金粉体を容易に得ることができる。このときの板状粒子の扁平率、長径及び厚さの制御は、冷却ロールの回転速度、溶湯の温度、噴霧条件等を適宜調整することにより制御できる。

【0075】更に、得られた軟磁性合金粉体の表面を酸化して、板状粒子3…の表面に酸化皮膜を形成させても良い。板状粒子3の表面に酸化皮膜を形成すると、非晶質軟磁性合金焼結体の組織に残存する板状粒子の境界5が酸化皮膜で構成されることになり、この境界5における電気抵抗が更に大きくなって比抵抗が増大し、渦電流損が低減されて高周波領域における透磁率がより高くなる。また、この酸化皮膜は高い融点を示すので、焼結されても溶融することがなく焼結体の組織中に残存して、板状粒子の境界5が存在する非晶質軟磁性合金焼結体を容易に製造することができる。

【0076】次に粉体充填工程では、軟磁性合金粉体を金型に充填する際に、静磁場を印加する。例えば、円環

状の非晶質軟磁性合金焼結体1を製造する場合には、図6に示すような金型10を用いる。この金型10は、中空円筒型のダイ11と、このダイ11の中空部11aに挿入される上パンチ12および下パンチ13からなる。上パンチ12の下面には円柱状の突起12aが設けられており、これら上パンチ12、下パンチ13及びダイ11が一体化して、金型10の内部に円環状の型が形成される。なお、この金型10は、非磁性の材料からなることが好ましい。そしてこの金型10に上述の軟磁性合金粉体を充填する。充填の際には、金型のダイ11の側方から直流の磁場を印加することが好ましい。磁場を印加することにより金型10中にて板状粒子3…が一方に配列しやすくなる。なお、板状粒子を一方に配列できれば、磁場の印加のみならず、他の方法を採用することができる。

【0077】焼結工程では、金型10に充填された軟磁性合金粉体を、一軸圧力を印加しつつ所定の焼結温度まで加熱して焼結する。図7には、この焼結工程において用いて好適な放電プラズマ焼結装置の一例の要部を示す。この例の放電プラズマ焼結装置は、軟磁性合金粉体16を充填した金型10と、金型10の下パンチ13を支え、後述するパルス電流を流す際の一方の電極ともなるパンチ電極14と、金型10の上パンチ12を下側に押圧し、パルス電流を流す他方の電極となるパンチ電極15と、金型10内の軟磁性合金粉体16の温度を測定する熱電対17を主体として構成されている。そして、この放電プラズマ焼結装置は、チャンバ18内に収納されており、このチャンバ18は図示略の真空排気装置および雰囲気ガスの供給装置に接続されていて、金型10に充填される軟磁性合金粉体16を不活性ガス雰囲気などの所望の雰囲気下に保持できるように構成されている。なお、図7では通電装置が省略されているが、上下のパンチ12、13およびパンチ電極14、15には別途設けた通電装置が接続されていてこの通電装置からパルス電流をパンチ12、13およびパンチ電極14、15を介して通電できるように構成されている。

【0078】そして、軟磁性合金粉体16が充填された金型10を放電プラズマ焼結装置に設置し、チャンバ18の内部を真空引きするとともに、パンチ12、13で上下から一軸圧力Pを軟磁性合金粉体16に印加すると同時に、パルス電流を印加して軟磁性合金粉体16を加熱して焼結する。この放電プラズマ焼結処理においては、通電電流により軟磁性合金粉体16を所定の速度で素早く昇温することができ、また、通電電流の値に応じて軟磁性合金粉体16の温度を厳格に管理できるので、ヒータによる加熱などよりも速かに正確に温度管理ができ、これにより予め設計した通りの理想に近い条件で焼結ができる。

【0079】本発明において、軟磁性合金粉体16の焼結温度は、軟磁性合金粉体16を固化成形するために5

73K(300℃)以上とすることが必要であるが、軟磁性合金粉体16を構成する金属ガラス合金は、大きな過冷却液体の温度間隔 ΔT_x ($T_x - T_g$)を有しているため、この温度領域で加圧焼結することによって、高密度の焼結体を好ましく得ることができる。ただし、焼結温度が高すぎると、板状粒子3…が溶融して板状粒子の境界5が残存しなくなるおそれがある。更に、焼結温度が結晶化開始温度 T_x に近いと、結晶析出開始による結晶磁気異方性が生じて軟磁性特性が劣化するおそれがある。更にまた、放電プラズマ焼結装置の機構上、モニターされる焼結温度は金型10に設置されている熱電対17の温度であるため、軟磁性合金粉体16の温度よりも低い温度である。したがって、本発明における焼結温度は、結晶化開始温度を T_x 、焼結温度を T とした場合、好ましくは $T \leq T_x$ の範囲とされる。特に、焼結温度 T を713K(440℃)以下とするのがより好ましい。

【0080】本発明において、焼結を行う際の昇温速度は、ゆっくりとした昇温速度では結晶相が生成するおそれがあるため、40℃/分以上の早い昇温速度とするのが好ましい。また焼結の際に軟磁性合金粉体に印加する一軸圧力Pについては、圧力が低すぎると板状粒子を一定方向に配列させることができず、また焼結体を形成できなくなる。また、圧力が高すぎると板状粒子3…が高い圧力で圧密化されて板状粒子3…の境界5が消失するおそれがある。従って一軸圧力Pは、300MPa以上3000MPa以下とするのが好ましく、500MPa以上2000MPa以下とするのがより好ましい。更に、焼結体1の相対密度が98%以上になるように一軸圧力を印加すれば、軟磁性合金粉体16を構成する板状粒子3…が緻密に焼結されて組織中に空隙がほとんど残存することがないので、透磁率が高く、飽和磁束密度が大きい非晶質軟磁性合金焼結体1(非晶質軟磁性合金磁心2)を製造することができる。

【0081】本発明においては、板状粒子を構成する軟磁性合金が過冷却液体の温度間隔 ΔT_x を有する金属ガラス合金であるので、この板状粒子3…を焼結する際に温度間隔 ΔT_x の領域まで加熱すると、板状粒子3…がニュートン流体のごとき挙動を示して、板状粒子3…の流動性が大きくなる。また、板状粒子3…のごく一部が相互拡散する。そしてこの状態で一軸圧力Pを印加すると、板状粒子3…が、その板面方向を一軸圧力Pの印加方向の垂直方向に配向するように焼結される。このようにして、板状粒子3…から構成された軟磁性合金粉体を焼結することにより、組織中で板状粒子3…が規則正しく配向した緻密な非晶質軟磁性合金焼結体1を製造することができる。

【0082】さらに、得られた焼結体1に熱処理を施してもよく、これにより磁気特性を高めることができる。このときの熱処理温度はキュリー温度以上であり、かつ磁気特性を劣化させる結晶質相が析出する温度以下とさ

れ、具体的には金属ガラス合金の結晶化開始温度 T_x より低い温度であることが好ましく、より具体的には、 $(T_x - 200) K \sim (T_x - 20) K$ の範囲が好ましく、 $(T_g - 100) K \sim (T_g) K$ の範囲がより好ましく、 $(T_g - 5) K \sim (T_g - 10) K$ の範囲が最も好ましい。例えば、Fe-Al-Ga-P-C-B系の金属ガラス合金の場合には、熱処理温度を573 K (300°C) ~ 783 K (510°C) の範囲とすることが好ましく、643 K (370°C) ~ 743 K (470°C) の範囲とすることがより好ましく、693 K (420°C) ~ 733 K (460°C) の範囲とすることが最も好ましい。

【0083】このようにして得られた非晶質軟磁性合金焼結体1は、原料として用いられた金属ガラス合金と同じ組成を有するものであるから、室温で優れた軟磁性特性を有し、また熱処理によってより良好な磁性を示すものである。このため、優れたSoft magnetic特性（軟磁気特性）を有する材料として、この焼結体を磁気ヘッドのコア、あるいはトランスの磁心、更には、パルスモータの磁心等に広く適用することができ、従来材に比べて優れた軟磁気特性を有する磁心を得ることができる。

【0084】尚、上記説明では、金属ガラス合金からなる軟磁性合金粉体を放電プラズマ焼結により成形する方法を用いたが、これに限らず、ホットプレス法、押し出し法などの方法により加圧焼結することによっても非晶質軟磁性合金焼結体を得ることができる。

【0085】また、上記説明では、金型を用いて円環状の非晶質軟磁性合金焼結体を製造する方法を説明したが、これに限られず、バルク状の焼結体を製造し、これを切削加工して、円環状、棒状、平面視略E字状、平面視略工字状等の形状に切り出すことにより焼結体を製造しても良い。この場合、焼結体における板状粒子の配列方向を自由に設定することができる。

【0086】

【実施例】Fe、Al及びGaと、Fe-C合金、Fe-P合金、B及びSiを原料としてそれぞれ所定量秤量し、減圧Ar雰囲気下においてこれらの原料を高周波誘導加熱装置で溶解し、Fe70Al5Ga2P9.65C5.75B4.6Si3なる組成のインゴットを作製した。このインゴットをるつぼ内に入れて溶解し、減圧Ar雰囲気下でるつぼのノズルから回転しているロールに溶湯を吹き出して急冷する単ロール法により、幅15mm、厚さ25 μ mの非晶質相組織の金属ガラス合金薄帯を得た。これをロータールミルを用いて大気中で粉碎し、更に45~150 μ mの標準ふるいを用いて分級して板状粒子の集合体を得、これを軟磁性合金粉体とした。

【0087】次に、約2gの前記軟磁性合金粉体をWC製の金型にハンドプレスを用いて充填した後、図7に示す放電プラズマ焼結装置を用い、チャンバの内部を 3×10^{-5} torrの減圧雰囲気とし、上下のパンチ12、

13で軟磁性合金粉体を590 MPaまで加圧するとともに、通電装置からパルス電流を通電して軟磁性合金粉体を加熱した。パルス電流の波形は12パルス流した後で2パルス休止するものとし、500~3000 Aの電流で軟磁性合金粉体を室温から693 K (420°C) ~ 713 K (440°C) の焼結温度に加熱した。そして、軟磁性合金粉体に590 MPaの圧力を印加したままで前記の焼結温度を約8分間保持することにより焼結を行った。なお、昇温速度は40°C/分とした。焼結時の焼結温度及び圧力のタイムチャートを図8に示す。このようにして実験例1~4の非晶質軟磁性合金焼結体を得た。この焼結体の形状は、外径10mm、内径6mm、厚さ1mmの円環状であった。なお、実験例1及び実験例3の非晶質軟磁性合金焼結体は、693 K (420°C) で焼結した焼結体であり、実験例2の非晶質軟磁性合金焼結体は、703 K (430°C) で焼結した焼結体であり、実験例4の非晶質軟磁性合金焼結体は、713 K (440°C) で焼結した焼結体である。また、実験例3の非晶質軟磁性合金焼結体は、焼結時の圧力を290 MPaとした。

【0088】図9には、Fe70Al5Ga2P9.65C5.75B4.6Si3なる組成の金属ガラス合金薄帯及び軟磁性合金粉体のX線回折測定の結果を示す。図9から明らかに、金属ガラス合金薄帯及び軟磁性合金粉体のX線回折パターンは、いずれもブロードなパターンを示しており、いずれも非晶質相を主体とする組織を有していることがわかる。このように金属ガラス合金薄帯を粉碎して板状粒子を形成しても、結晶質相が析出することなく非晶質状態が維持されていることが判る。

【0089】図10には、上記の組成の金属ガラス合金薄帯及び軟磁性合金粉体のDSC曲線（Differential scanning calorimeter：示差走査熱量測定による曲線）を示す。図10から、金属ガラス合金薄帯については、 $T_x = 805 K$ (532°C)、 $T_g = 745 K$ (472°C)、 $\Delta T_x = 60 K$ が求められる。また、軟磁性合金粉体については、 $T_x = 805 K$ (532°C)、 $T_g = 745 K$ (472°C)、 $\Delta T_x = 60 K$ が求められる。このように、金属ガラス合金薄帯及び軟磁性合金粉体には結晶化温度 T_x 以下の広い温度領域で過冷却液体域が存在し、 $\Delta T_x = T_x - T_g$ で示される値が大きく、この系の組成の合金が高いアモルファス形成能を有することがわかる。

【0090】図11~図13に実験例1、3、4の非晶質軟磁性合金焼結体の断面を示す。図11に示す実験例1の非晶質軟磁性合金焼結体は、板状粒子同士が境界を残して焼結されており、また各板状粒子の板面の板面方向が焼結体の厚さ方向の垂直方向に配向されて、焼結体の厚さ方向に積層するように規則的に配向されていることがわかる。図12に示す実験例3の非晶質軟磁性合金焼結体においては、板状粒子同士が焼結されて板状粒子

間の境界が存在していることは確認できるが、板状粒子が乱雑に配向しており、一定の方向に揃って配向していないことがわかる。これは、焼結時の印加圧力が低かったために、板状粒子が規則的に配向しないまま焼結されたためと考えられる。

【0091】図13に示す実験例4の非晶質軟磁性合金焼結体においては、板状粒子同士の境界がはっきり確認できない。実験例4の非晶質軟磁性合金焼結体については、焼結温度がやや高いために、板状粒子の一部分若しくは大部分が溶解して、板状粒子同士が熔融状態で焼結されたために、板状粒子間の境界が消失したものと考えられる。尚、実験例2の非晶質軟磁性合金焼結体は、実験例1の焼結体と同様に、板状粒子同士が境界を残して規則的に配向して焼結されていた。

【0092】また、実験例1の非晶質軟磁性合金焼結体の電気抵抗を測定したところ、 $260\mu\Omega\text{m}$ を得た。また、金属ガラス合金薄帯の電気抵抗を測定したところ、 $180\mu\Omega\text{m}$ を得た。薄帯よりも非晶質軟磁性合金焼結体の方が大きな電気抵抗を示したのは、板状粒子の境界が存在していて、境界における抵抗が存在するためと考えられる。このように、非晶質軟磁性合金焼結体の電気抵抗を高くできるので、過電流損を減少させて高周波特性を向上させることができる。

【0093】次に図14には、実験例1、2、4の非晶質軟磁性合金焼結体のX線回折測定の結果を示す。図14から明らかなように、実験例1及び実験例2の非晶質軟磁性合金焼結体のX線回折パターンは、いずれもブロードなパターンを示しており、非晶質相を主体とする組織であることがわかる。一方、実験例4の非晶質軟磁性合金焼結体のX線回折パターンには、シャープな回折パターンが観察され、結晶質相が析出していることがわかる。実験例4においては焼結温度がやや高かったため、板状粒子が溶解して結晶質相が析出したものと考えられる。

【0094】図15には実験例1、2、4の非晶質軟磁性合金焼結体のDSC曲線を示す。図15から、実験例1の非晶質軟磁性合金焼結体については、 $T_x=805\text{K}$ (532°C)、 $T_g=745\text{K}$ (472°C)、 $\Delta T_x=60\text{K}$ が求められ、実験例2の非晶質軟磁性合金焼結体については、 $T_x=805\text{K}$ (532°C)、 $T_g=745$

K (472°C)、 $\Delta T_x=60\text{K}$ が求められ、いずれも過冷却液体の温度間隔 ΔT_x を有していて、金属ガラス合金の状態にあることがわかる。一方、実験例4の非晶質軟磁性合金焼結体については、 $T_x=805\text{K}$ (532°C)が認められるものの T_g が観察されず、過冷却液体の温度間隔 ΔT_x を有していないことがわかる。

【0095】図16には、実験例1、2、4の非晶質軟磁性合金焼結体の密度と焼結温度との関係を示し、図17には、相対密度と焼結温度との関係を示す。また表1に密度と相対密度の測定値を示す。なお、 $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$ なる組成の合金粉体を、昇温速度 $40^\circ\text{C}/\text{分}$ 、焼結温度 683K (410°C) \sim 723K (450°C)、保持時間8分、焼結圧力 590MPa の条件で焼結することにより、円環状の比較例1～4の軟磁性合金焼結体を得た。この比較例1～4の軟磁性合金焼結体の密度及び相対密度を図16、図17及び表1に併せて示す。

【0096】図16及び図17から明らかなように、実験例1、2、4の非晶質軟磁性合金焼結体は、相対密度が98%以上であり、また焼結温度による密度及び相対密度の変動が比較的小さく、比較的低い焼結温度でも高い相対密度を示し、また 703K (430°C)の焼結温度でも非晶質相組織を有していることがわかる。一方、比較例1～4の軟磁性合金焼結体は、焼結温度による密度及び相対密度の変動が大きく、低い焼結温度では相対密度が低く、高い焼結温度では相対密度が上昇するものの、 703K (430°C)を越えると結晶質相が析出していることがわかる。

【0097】これは、本発明に係る非晶質軟磁性合金焼結体が、過冷却液体の温度間隔 ΔT_x を有する金属ガラス合金からなる軟磁性合金粉体が焼結されたものであり、焼結の際にこの軟磁性合金粉体がニュートン流体として挙動し、軟磁性合金粉体を構成する板状粒子が緻密に焼結されるので、比較的低い焼結温度でも98%以上の高い相対密度を示したものと考えられる。また、本発明に係る非晶質軟磁性合金焼結体が、アモルファス形成能が高い金属ガラス合金からなるので、比較的高い焼結温度でも非晶質組織を維持できたものと考えられる。

【0098】

【表1】

	焼結温度 (K)	密度 ($\times 10^3$) (kgm^{-3})	相対密度 (%)	B _s (T)	B ₁₀ (T)	H _c (Am^{-1})	μ' (1 kHz)
実験例 1	693	6.921	98.9	1.15	1.08	12.7	1692
実験例 2	703	6.922	98.9	1.17	1.07	11.9	1623
実験例 3	693	6.927	99.0	1.15	0.81	37.8	920
実験例 4	713	6.992	99.9	1.13	0.01	—	30
比較例 1	683	6.504	90.6	1.42	0.39	79.6	372
比較例 2	693	6.702	93.3	1.46	0.50	84.8	484
比較例 3	703	6.974	97.1	1.51	0.35	219	187
比較例 4	723	7.180	100.0	0.57			

【0099】図18には実験例1、2、4の非晶質軟磁性合金焼結体のB-H曲線を示す。実験例4 ($T_s=713\text{K}$)の非晶質軟磁性合金焼結体は、実験例1、2 ($T_s=693\text{K}$ 、 703K)よりも、印加磁場 800A/m における磁束密度が大幅に低下している。これは、実験例4の非晶質軟磁性合金焼結体の焼結温度が高いため、組織中に結晶質相が析出して軟磁気特性が低下したためと考えられる。

【0100】また図19には実験例2及び比較例2の焼結体のB-H曲線を示す。実験例2の $\text{Fe}_{70}\text{Al}_{15}\text{Ga}_2\text{P}_{9.65}\text{C}_{5.75}\text{B}_{4.6}\text{Si}_3$ なる組成の焼結体は、比較例2の $\text{Fe}_{78}\text{Si}_{13}\text{B}_{13}$ なる組成の焼結体よりも印加磁場 800A/m における磁束密度が大幅に高く、また磁場0 (A/m)付近におけるB-H曲線の傾きが比較例2の曲線よりも大きくなっており、軟磁気特性に優れていることが判る。

【0101】図20、図21には、実験例1、2、4の非晶質軟磁性合金焼結体及び比較例1～4の、軟磁性合金焼結体の飽和磁束密度 (B_s) 及び印加磁場 800A/m における磁束密度 (B_{800}) 及び保磁力 (H_c) 及び 1kHz における透磁率 (μ') の焼結温度依存性 (T_s) を示す。図20に示すように $\text{Fe}_{70}\text{Al}_{15}\text{Ga}_2\text{P}_{9.65}\text{C}_{5.75}\text{B}_{4.6}\text{Si}_3$ なる組成の焼結体 (実験例1、2、4) においては、焼結温度が 713K (440°C) になると、磁束密度 (B_{10}) 及び透磁率 (μ') が低下していることがわかる。これは、焼結温度が高くなるにつれて組織中に結晶質相が析出して軟磁気特性が低下したためと考えられる。また図21に示すように、実験例1及び実験例2の焼結体は、 $\text{Fe}_{78}\text{Si}_{13}\text{B}_{13}$ なる組成の焼結体 (比較例1～4) と比較して、非晶質相単相が得られる焼結温度では、 B_s 、 B_{800} 、 μ' が高く、 H_c が低く、優れた軟磁気特性を示していることが判る。

【0102】次に、実験例2及び比較例2の焼結体にそれぞれ巻線を施してコアロスWを測定した。コアロスWの測定は、印加する測定磁束密度 B_m を $0.05\sim 1\text{T}$

の範囲とし、磁場の周波数を $50\text{Hz}\sim 100\text{kHz}$ の範囲とした条件で行った。結果を図22に示す。図22に示すようにいずれの条件においても、実験例2の焼結体のコアロスWは、比較例2の焼結体のコアロスWより小さく、磁心として優れていることが判る。

【0103】次に、実験例2の焼結体に熱処理を施したときの物性、磁気特性等を調査した。まず、 703K (430°C) で焼結した $\text{Fe}_{70}\text{Al}_{15}\text{Ga}_2\text{P}_{9.65}\text{C}_{5.75}\text{B}_{4.6}\text{Si}_3$ なる組成の実験例2の焼結体を、 0.01Pa 以下の減圧雰囲気中で 723K (450°C)、 743K (470°C) の熱処理温度 (T_a) で熱処理した。熱処理後の焼結体の組織の状態をX線回折により調査した。結果を図23に示す。図23から明らかなように、どの焼結体もブロードなX線回折パターンを示しており、いずれも非晶質相を主体とする組織を有していることがわかる。即ち、 743K で熱処理しても結晶質相が析出しないことが判る。このことは、熱処理の温度が図10に示した上記組成の合金の T_x (805K (532°C)) より低いことから明白である。

【0104】次に、実験例2の焼結体を、上記と同様にして 623K (350°C)、 723K (450°C)、 743K (470°C) の熱処理温度 (T_a) で熱処理した。熱処理後の焼結体のDSC曲線を示差走査熱量測定によって測定した。結果を図24に示す。図24に示すように、これらの焼結体には結晶化温度 T_x 以下の広い温度領域で過冷却液体域が存在しており、熱処理が施されても非晶質状態を維持していることが判る。

【0105】図25には実験例2の焼結体の結晶化開始温度 T_x 、ガラス遷移温度 T_g 、キュリー温度 T_c 及び過冷却液体の温度間隔 ΔT_x の熱処理温度 T_a 依存性を示す。熱処理温度が 703K (430°C) を越えたあたりから ΔT_x が若干小さくなり始めるが、熱処理温度が 703K 以下の範囲では T_x 、 T_g 、 T_c 及び ΔT_x はそれぞれ一定になっていることが判る。

【0106】図26には、実験例2の焼結体のB-H曲

線、及び実験例2の焼結体を723K(450℃)で熱処理したもののB-H曲線を示す。図26から明かなように、熱処理後の焼結体は、熱処理前の実験例2の焼結体よりも印加磁場800A/mにおける磁束密度が高く、また磁場0(A/m)付近におけるB-H曲線の傾きが熱処理前の焼結体の曲線よりも大きくなっており、熱処理により軟磁気特性が向上していることが判る。

【0107】次に図27に、実験例2及び実験例5のそれぞれ焼結体の、印加磁場800A/mにおける磁束密度(B800)及び保磁力(Hc)及び1kHzにおける透磁率(μ')の熱処理温度依存性(T_d)を示す。また、実験例2及び実験例5の焼結体の断面の電子顕微鏡写真を図28及び図29にそれぞれ示す。

【0108】実験例5の焼結体とは、焼結圧力を290MPaとしたこと以外は実験例2の焼結体と全く同様にして製造したものである。実験例5の焼結体の焼結圧力は、実験例2の焼結圧力よりも小さくなっており、そのため図29に示すように実験例5の焼結体は板状粒子の配向が不規則になっていることが判る。そして図27からも明かなように、実験例2の焼結体は、実験例5の焼結体よりもBs、B800、 μ' が高く、Hcが低く、優れた軟磁気特性を示していることが判る。これは、図28に示すように実験例2の焼結体に含まれる板状粒子が実験例5のものよりも規則的に配向しているためと推定される。

【0109】次に、実験例2及び実験例5の焼結体にそれぞれ巻線を施してコアロスWを測定した。コアロスWの測定は、測定磁束密度Bmを0.1~0.5Tの範囲とし、磁場の周波数を50Hz~100kHzの範囲とした条件で行った。結果を図30に示す。なお例えば、周波数100kHz、0.1Tの磁束密度で測定したコアロスは、図中W0.1/100kHzと記載している。図30に示すようにどの条件においても、実験例2の焼結体のコアロスWは実験例5の焼結体のコアロスWより小さく、磁心として優れていることが判る。

【0110】以上の実験結果から、金属ガラス合金からなる板状粒子同士を、それぞれの境界を残して焼結すると共に熱処理することにより得られた焼結体は、非晶質相を主相としてなり、軟磁気特性、およびコアロスに優れているので、磁気ヘッド、トランス、モータ等の磁心に好適に用いることができる。

【0111】

【発明の効果】以上、詳細に説明したように、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体は、板状粒子からなる軟磁性合金粉体が焼結されてなるものであって、組織中に前記板状粒子の境界が存在しており、この境界において電気抵抗が大きくなるので、渦電流損が低減されて高周波領域における透磁率を高くすることができる。また、組織中に前記板状粒子の境界が存在しており、板状粒子同士が圧着された状態であるので、結晶質相が析出することが

なく、優れた軟磁気特性を発現させることができる。

【0112】また、組織中の少なくとも80%以上の前記板状粒子が、その板面の板面方向をほぼ一軸方向に配向させ、かつ一軸方向に対する板面方向のずれ角が20°以下であるので、反磁界による軟磁気特性の悪影響を低減することができ、優れた軟磁気特性を発現させることができる。

【0113】更に、前記板状粒子が非晶質相を主相とする軟磁性合金からなり、この軟磁性合金が、過冷却液体の温度間隔 ΔT_x が20K以上である金属ガラス合金であるので、この板状粒子が温度間隔 ΔT_x の領域まで加熱されると、板状粒子がニュートン流体のごとき挙動を示して板状粒子の流動性が大きくなると共に、板状粒子のごく一部が相互拡散するので、板状粒子が容易に焼結されて成形され、緻密な焼結体とすることができる。

【0114】更に、本発明の非晶質軟磁性合金焼結体は、相対密度が98%以上であるので、板状粒子同士が緻密に焼結されて組織中に空隙がほとんど残存せず、軟磁気特性に優れた非晶質軟磁性合金焼結体を構成することができる。

【0115】本発明の非晶質軟磁性合金磁心は、組織中に前記板状粒子の境界が存在していると共に、少なくとも80%以上の前記板状粒子が、その板面の板面方向を磁路方向に一軸配向させるように配向しており、かつ一軸方向に対する板面方向のずれ角が20°以下であるので、反磁界による軟磁気特性の悪影響が低減されて、コアロスを小さくすることができる。

【0116】また、本発明の非晶質軟磁性合金磁心は、形状が円環状とされ、前記磁路方向がその円周方向とされているので、トランスのコアとして好適に用いることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の実施形態である非晶質軟磁性合金焼結体(非晶質軟磁性合金磁心)を示す斜視図である。

【図2】 板状粒子を示す模式図である。

【図3】 図1に示す非晶質軟磁性合金焼結体(非晶質軟磁性合金磁心)の断面模式図である。

【図4】 非晶質軟磁性合金焼結体(非晶質軟磁性合金磁心)の組織中における、板状粒子の配向方向を説明するための模式図である。

【図5】 非晶質軟磁性合金焼結体(非晶質軟磁性合金磁心)の組織中における、板状粒子の配向方向を説明するための模式図である。

【図6】 図1に示す非晶質軟磁性合金焼結体(非晶質軟磁性合金磁心)を製造する際に用いる金型の分解斜視図である。

【図7】 放電プラズマ焼結装置の要部を示す図である。

【図8】 焼結条件のプログラムを示すグラフである。

【図9】 金属ガラス合金帯及び軟磁性合金粉体のX

線回折パターンを示す図である。

【図10】 金属ガラス合金薄帯及び軟磁性合金粉体のDSC曲線を示す図である。

【図11】 実験例1の非晶質軟磁性合金焼結体の断面の模式図である。

【図12】 実験例3の非晶質軟磁性合金焼結体の断面の模式図である。

【図13】 実験例4の非晶質軟磁性合金焼結体の断面の模式図である。

【図14】 実験例1、2、4の非晶質軟磁性合金焼結体のX線回折パターンを示す図である。

【図15】 実験例1、2、4の非晶質軟磁性合金焼結体のDSC曲線を示す図である。

【図16】 実験例1、2、4及び比較例1～4の焼結体の密度の焼結温度(T_s)依存性を示すグラフである。

【図17】 実験例1、2、4及び比較例1～4の焼結体の相対密度の焼結温度(T_s)依存性を示すグラフである。

【図18】 実験例1、2、4の非晶質軟磁性合金焼結体のB-H曲線を示す図である。

【図19】 実験例2及び比較例2の焼結体のB-H曲線を示す図である。

【図20】 実験例1、2、4の非晶質軟磁性合金焼結体及び金属ガラス合金薄帯の飽和磁束密度(B_s)、印加磁場800A/mにおける磁束密度(B_{800})、保磁力(H_c)及び1kHzにおける透磁率(μ')の、焼結温度(T_s)依存性を示すグラフである。

【図21】 実験例1、2、4及び比較例1～4の焼結体の飽和磁束密度(B_s)、印加磁場800A/mにおける磁束密度(B_{800})、保磁力(H_c)及び1kHzにおける透磁率(μ')の、焼結温度(T_s)依存性を

示す図である。

【図22】 実験例2及び比較例2の焼結体のコアロスの磁束密度(B_m)の依存性を示すグラフである。

【図23】 実験例2の非晶質軟磁性合金焼結体及びこの焼結体を熱処理して得た焼結体のX線回折パターンを示す図である。

【図24】 実験例2の非晶質軟磁性合金焼結体及びこの焼結体を熱処理して得た焼結体のDSC曲線を示す図である。

【図25】 実験例2の非晶質軟磁性合金焼結体の結晶化開始温度(T_x)及びガラス遷移温度(T_g)及びキュリー温度(T_c)及び過冷却液体の温度間隔(ΔT_x)の、熱処理温度(T_a)依存性を示すグラフである。

【図26】 実験例2の非晶質軟磁性合金焼結体の熱処理前後でのB-H曲線を示す図である。

【図27】 実験例2及び実験例5の非晶質軟磁性合金焼結体の印加磁場800A/mにおける磁束密度(B_{800})、保磁力(H_c)及び1kHzにおける透磁率(μ')の、熱処理温度(T_a)依存性を示すグラフである。

【図28】 実験例2の非晶質軟磁性合金焼結体の断面の電子顕微鏡写真である。

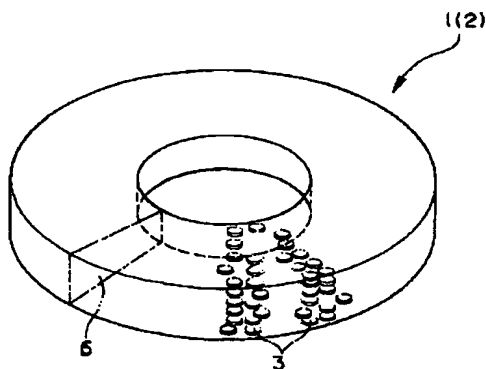
【図29】 実験例5の非晶質軟磁性合金焼結体の断面の電子顕微鏡写真である。

【図30】 実験例2及び実験例5の焼結体のコアロスの熱処理温度(T_a)依存性を示すグラフである。

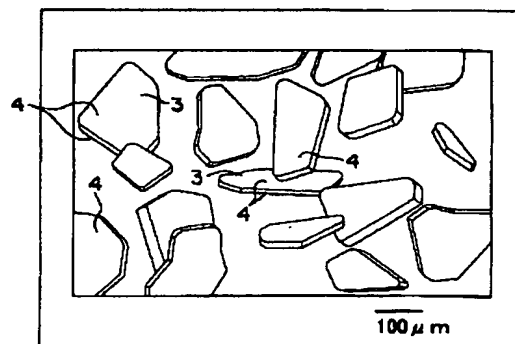
【符号の説明】

- 1 非晶質軟磁性合金焼結体
- 2 非晶質軟磁性合金磁心
- 3 板状粒子
- 4 板面
- 5 境界

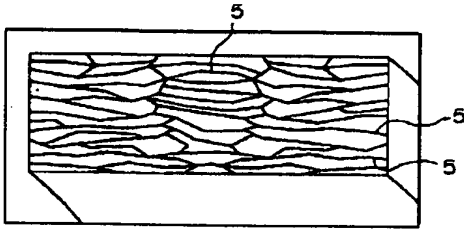
【図1】



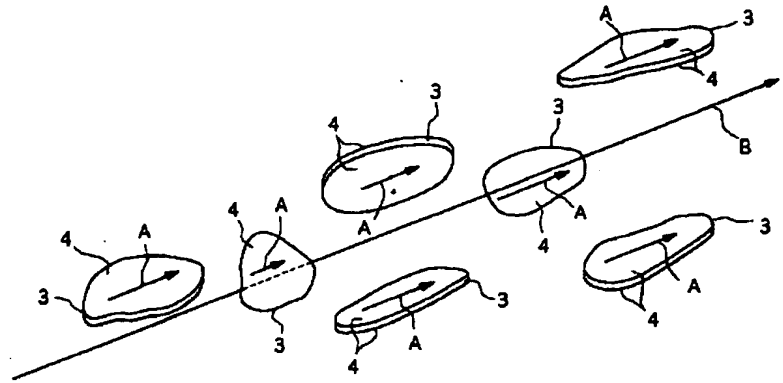
【図2】



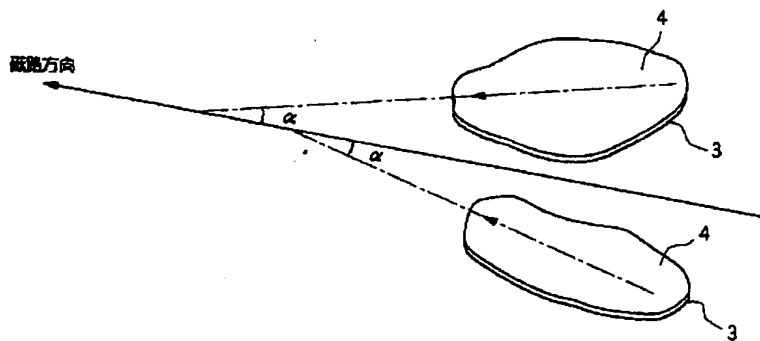
【図3】



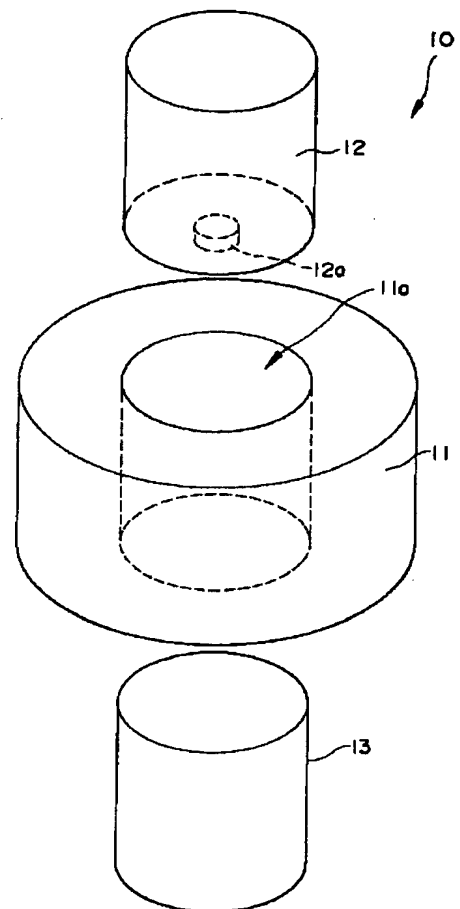
【図4】



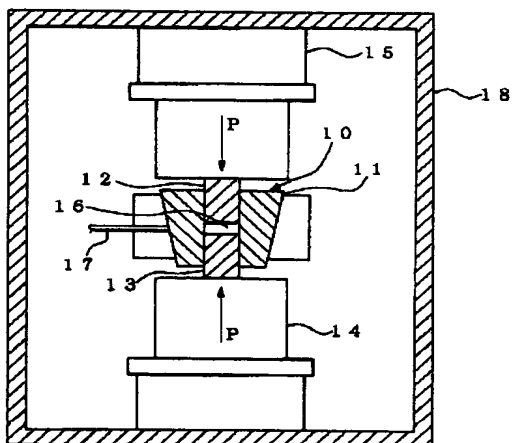
【図5】



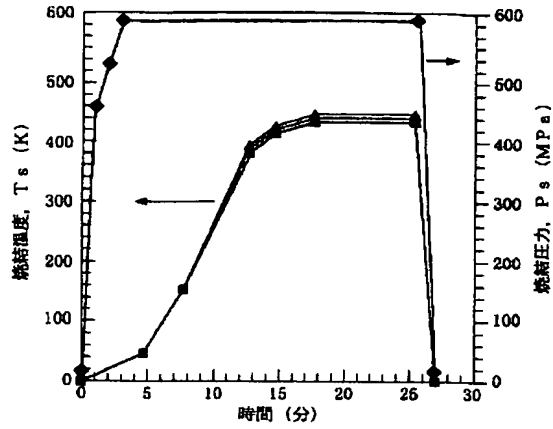
【図6】



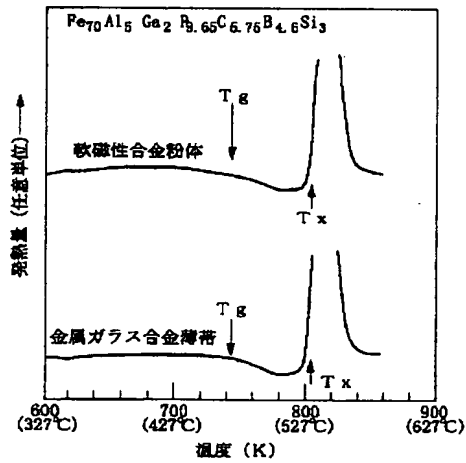
【図7】



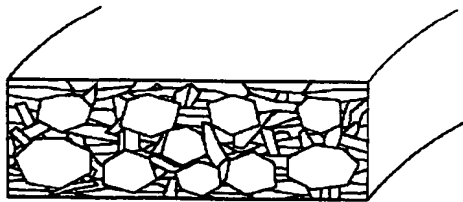
【図 8】



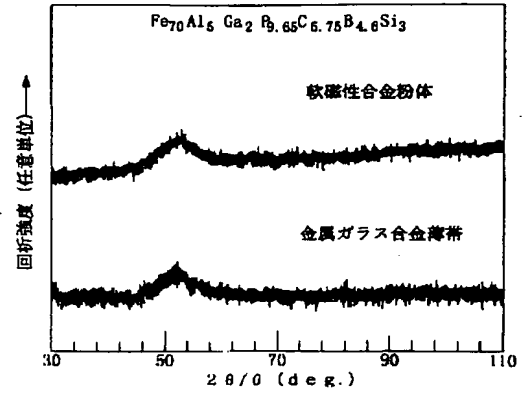
【図 10】



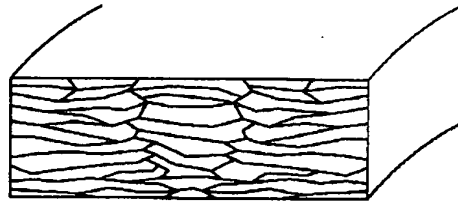
【図 12】



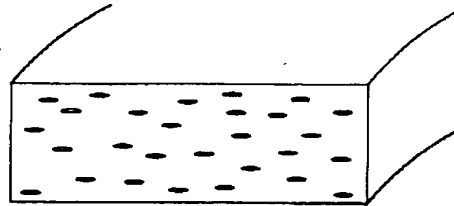
【図 9】



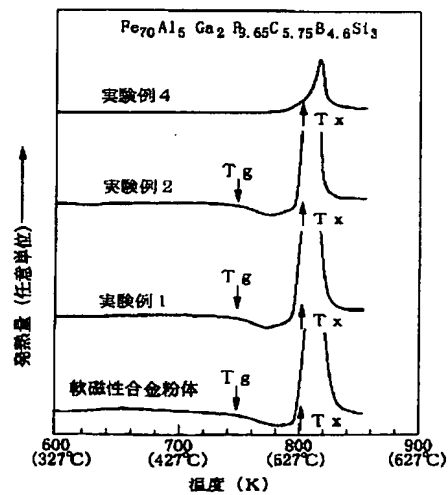
【図 11】



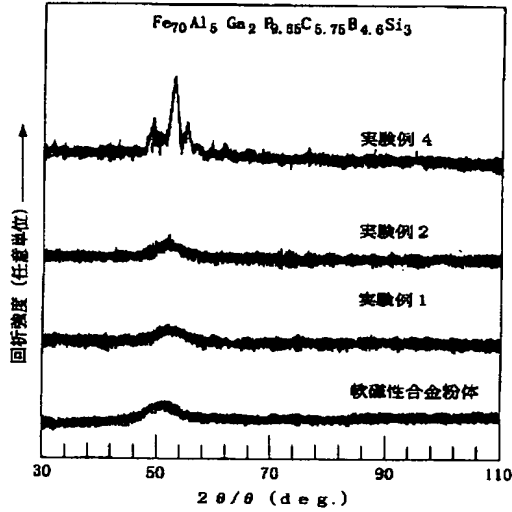
【図 13】



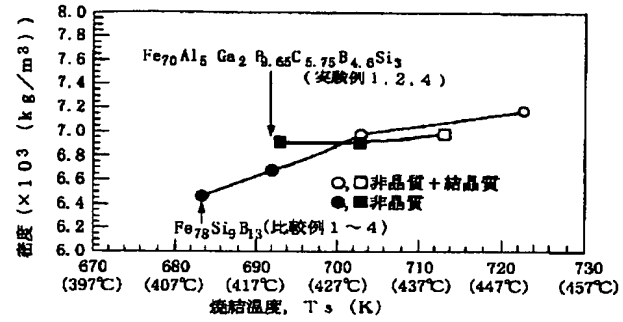
【図 15】



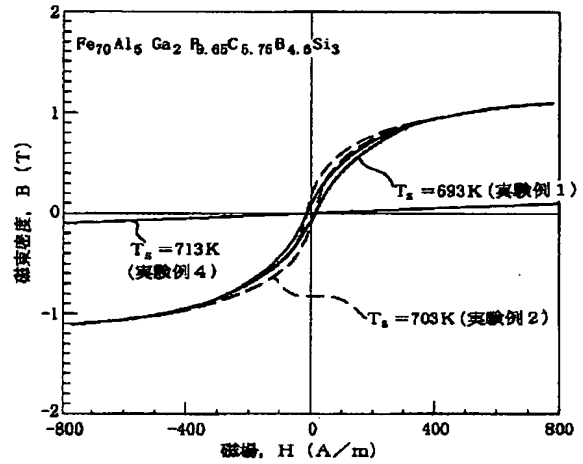
【図14】



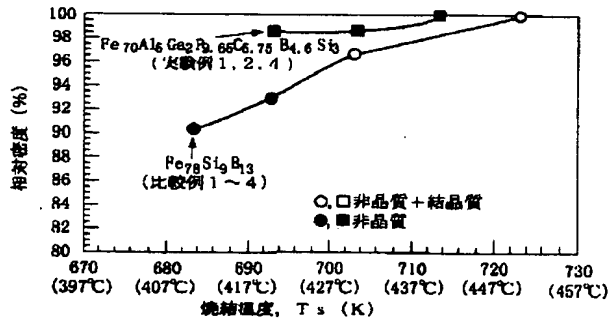
【図16】



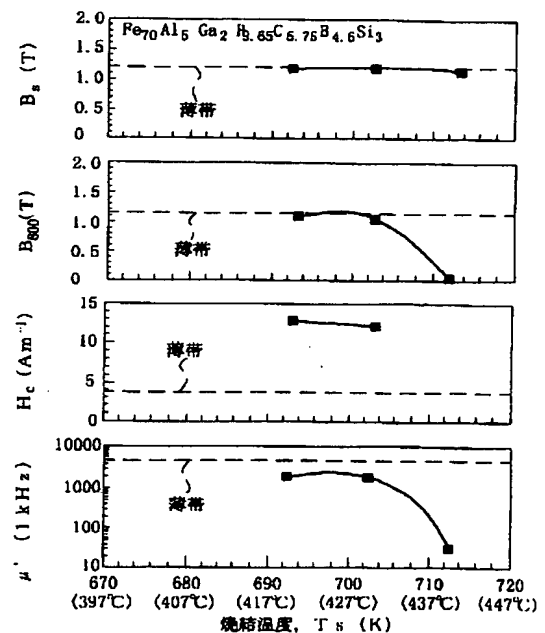
【図18】



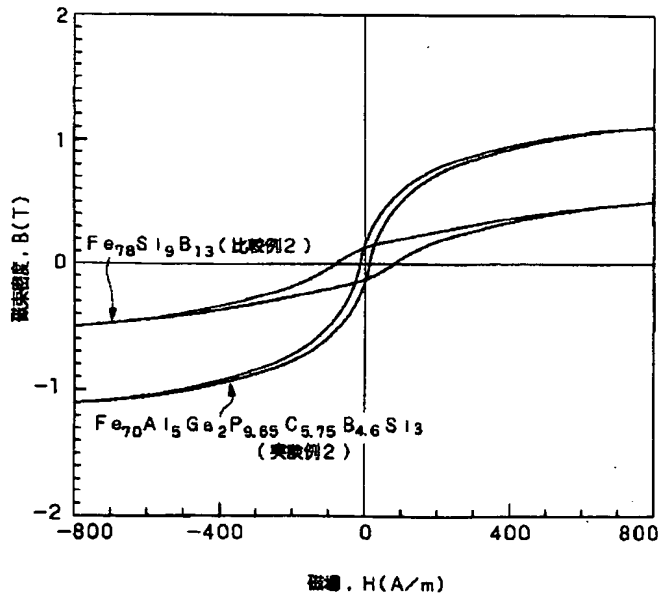
【図17】



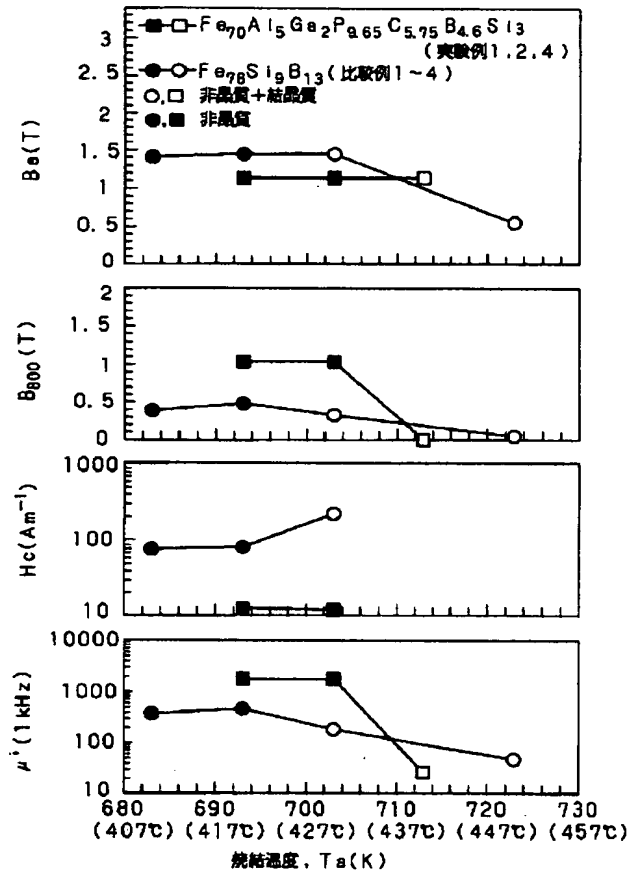
【図20】



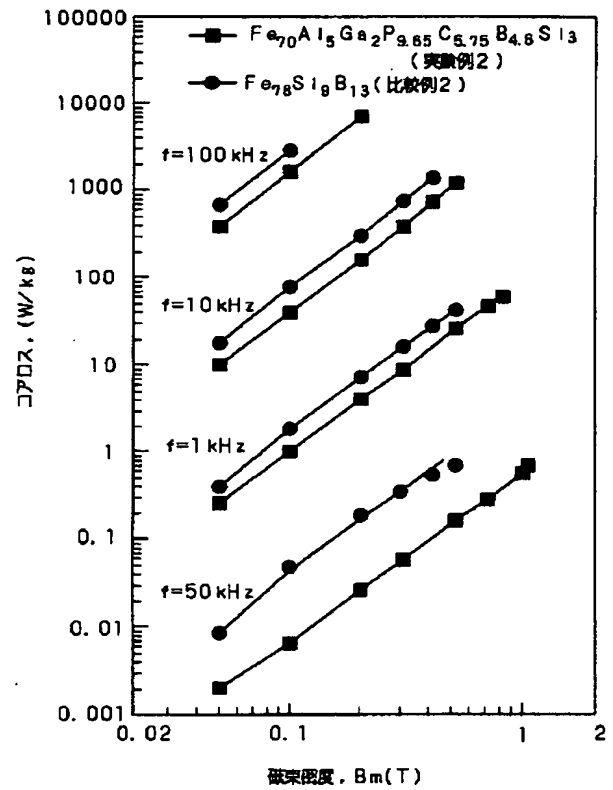
【図19】



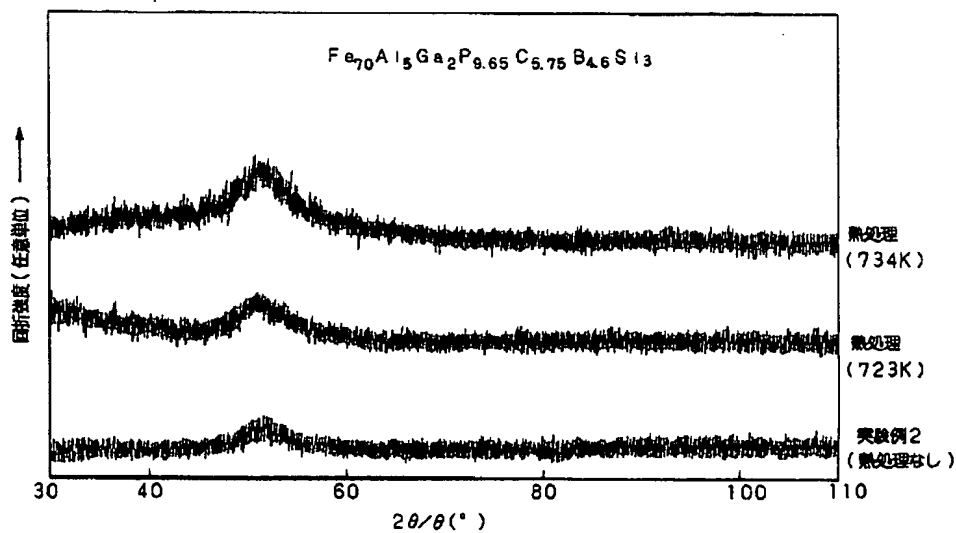
【図21】



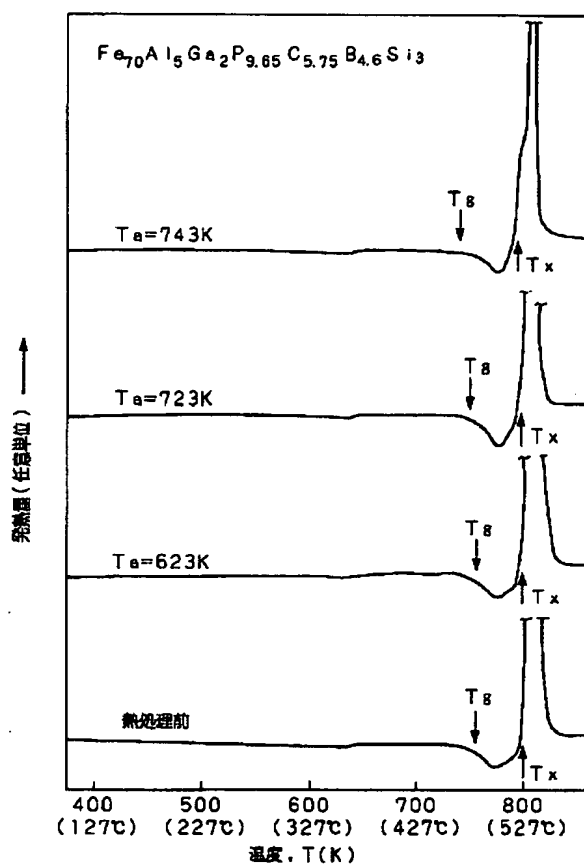
【図22】



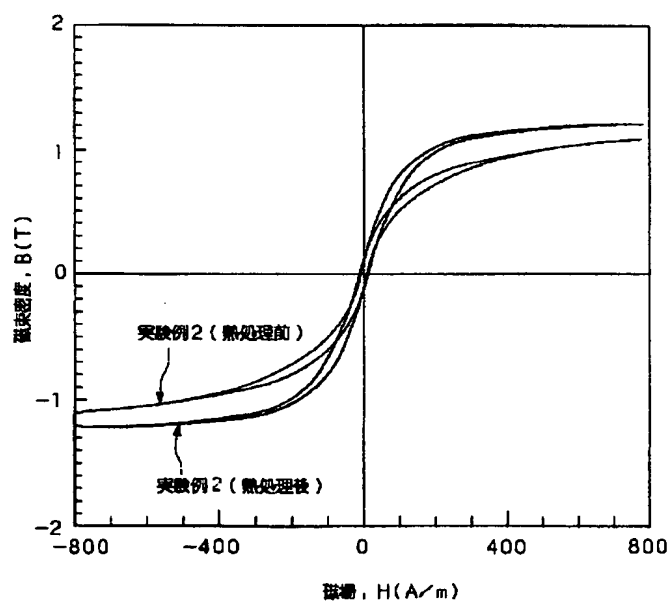
【図23】



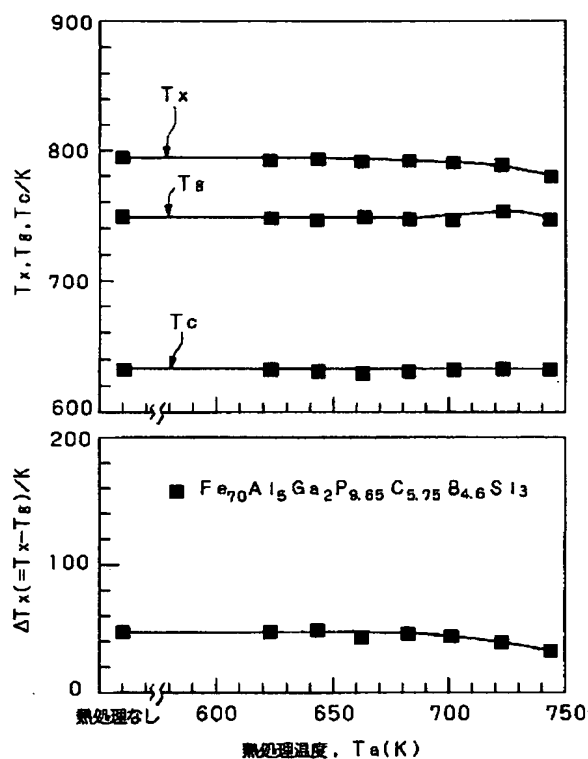
【図24】



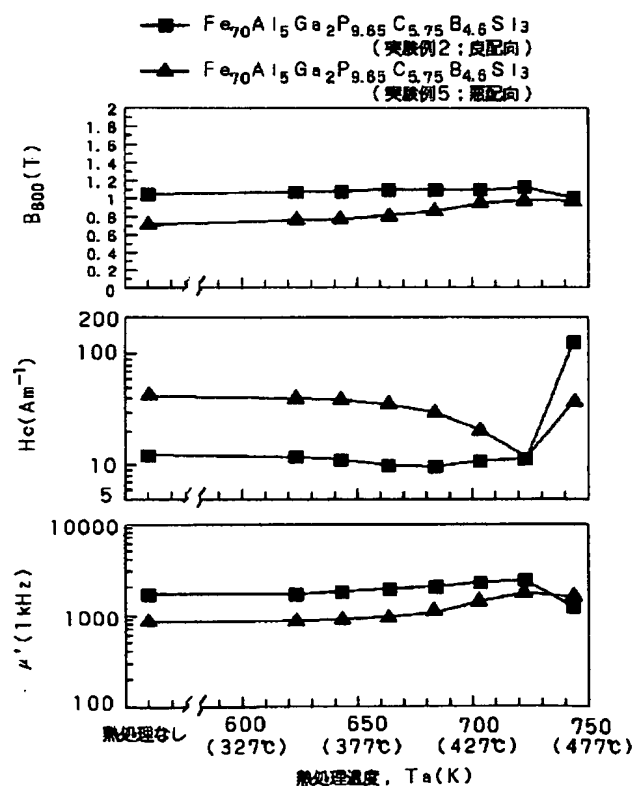
【図26】



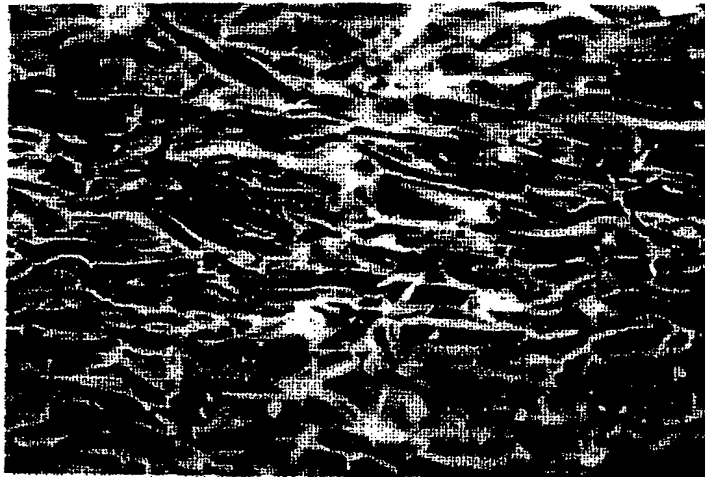
【図25】



【図27】



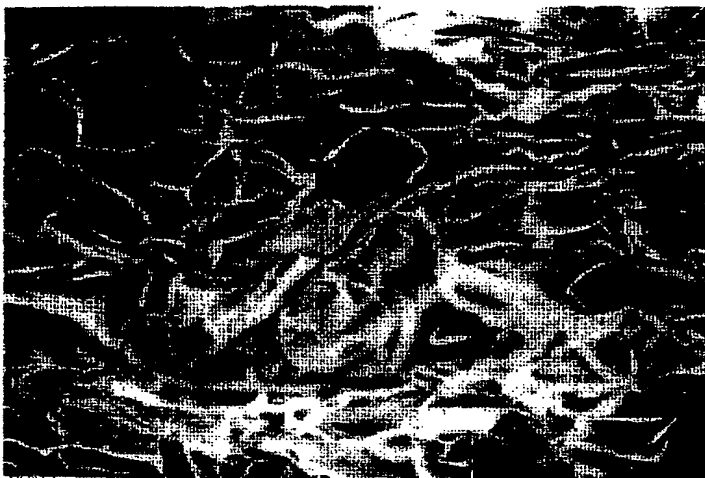
【図28】



a) x 100
fracture surface

100 μm

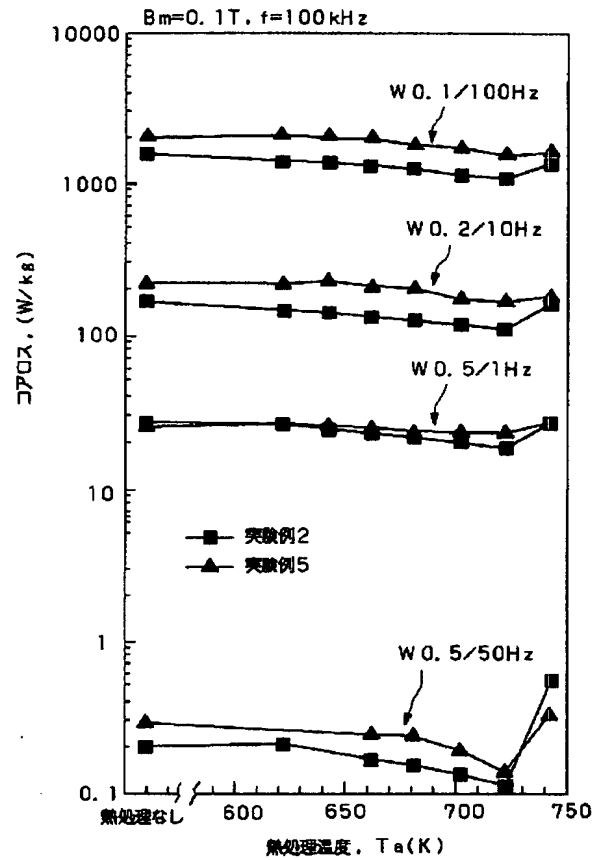
【図29】



b) x 100

100 μm

【図30】



フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7

C 2 2 C 38/00

H 0 1 F 1/22

識別記号

3 0 4

F I

B 2 2 F 3/00

H 0 1 F 1/22

テーマコード (参考)

E

(72)発明者 水嶋 隆夫
東京都大田区雪谷大塚町1番7号 アルプ
ス電気株式会社内

(72)発明者 牧野 彰宏
東京都大田区雪谷大塚町1番7号 アルプ
ス電気株式会社内

(72)発明者 井上 明久
宮城県仙台市青葉区川内元支倉35番地 川
内住宅11-806

Fターム(参考) 4K018 AA11 BB07 CA19 DA11 KA43
5E041 AA11 AA19 BC01 BD01 BD03
CA02 CA04 HB03 HB06 HB07
HB11 HB17 NN01 NN06